

INAUGURAL-DISSERTATION  
zur  
Erlangung der Doktorwürde  
der  
Naturwissenschaftlich-Mathematischen  
Gesamtfakultät  
der  
Ruprecht-Karls-Universität  
Heidelberg

vorgelegt von  
Dipl.-Phys. Thomas Schilles  
aus Sigmaringen

Tag der mündlichen Prüfung 16. Januar 2002



# Die Infrarot-Radiolumineszenz von Feldspäten und ihr Einsatz in der Lumineszenzdatierung

Gutachter: Prof. Dr. Günther A. Wagner  
Prof. Dr. Kurt Roth



## Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Methodik und Anwendung der Radiolumineszenz-Datierung an Feldspäten. Der Schwerpunkt liegt auf der infraroten Radiolumineszenzemission (IR-RL) von Feldspäten. Um Messungen der IR-RL durchführen zu können, wurden geeignete Messgeräte entwickelt und aufgebaut. Neben der Erweiterung eines bestehenden Lumineszenz-Spektrometers auf RL-Messungen und dem Aufbau eines RL-Messgerätes zur Einzelphotonen-zählung wurde ein RL-Messgerät mit Röntgenstimulation aufgebaut. Die im Spektrometer und im Messgerät mit Einzelphotonenzählung eingesetzte  $^{137}\text{Cs}$ -Quelle wurde ebenso wie die Röntgenröhre kalibriert. Mit den Geräten wurden grundlegende Untersuchungen durchgeführt, insbesondere im Hinblick auf die Anwendung der IR-RL in der Lumineszenzdatierung. Dabei wurden Bleicheigenschaften und Reproduzierbarkeit des IR-RL-Signals von Feldspäten detailliert untersucht. Aufgrund der gewonnenen Erkenntnisse wurde eine IR-RL-Technik zur Dosisbestimmung entwickelt, bei der bei den Messungen auftretende Sensitivitätsänderungen korrigiert werden. Mit dieser Methode wurden sowohl grobkörnige Feldspatproben als auch polymineralische Feinkornproben untersucht. Die Messung der Feinkornproben wurden mit der neuen Technik der Röntgenstimulation durchgeführt. Die Ergebnisse zeigen zum Teil Übereinstimmung mit Referenzwerten, zum Teil werden diese überschätzt.

## Abstract

This thesis presents methodical studies and applications of radioluminescence (RL) dating of feldspars. The main emphasis lies on the infrared radioluminescence emission (IR-RL) of feldspar. An existing luminescence-spectrometer was adapted to allow radioluminescence measurements. A new RL-reader with a single-photon-counting detector and a RL-reader with X-ray stimulation were developed and constructed. The  $^{137}\text{Cs}$ -source used in the spectrometer and the single-photon-counting RL-reader as well as the X-ray-source were calibrated. Fundamental investigations concerning the bleachability and reproducibility of the IR-RL signal were carried out. Based on the results of these measurements, an IR-RL technique for dose determination was developed and applied to a set of coarse-grain feldspar and polymineral fine-grain samples. The measurements of the fine-grain samples were carried out with the new X-ray stimulation technique. Some IR-RL ages showed good agreement with reference ages, in other cases an overestimation of the IR-RL ages was found.



# Inhaltsverzeichnis

<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>11</b>
<b>Tabellenverzeichnis</b>	<b>15</b>
<b>1. Einleitung</b>	<b>17</b>
<b>2. Grundlagen der Lumineszenzdatierung</b>	<b>19</b>
2.1. Physikalische Grundlagen . . . . .	19
2.1.1. Modellvorstellungen . . . . .	20
2.1.2. Begriffserläuterungen . . . . .	21
2.1.3. Anforderungen an die Datierungsmethode . . . . .	22
2.1.4. Altersgleichung . . . . .	23
2.2. Bestimmung der Äquivalenzdosis . . . . .	24
2.2.1. Die Wachstumskurve . . . . .	24
2.2.2. Sensitivitätsänderungen . . . . .	25
2.2.3. Normierung . . . . .	25
2.2.4. Aufbau der Wachstumskurve . . . . .	26
2.3. Bestimmung der Dosisleistung . . . . .	27
2.3.1. Quellen der Dosisleistung . . . . .	27
2.3.2. Bestimmung der Dosisleistung und der Nuklidgehalte . . . . .	28
2.3.3. Berechnung der Dosisleistung aus den Nuklidgehalten . . . . .	28
<b>3. Messtechnik</b>	<b>33</b>
3.1. Spektrale Messungen der Radiolumineszenz . . . . .	33
3.1.1. Aufbau des Spektrometers . . . . .	33
3.1.2. Kalibration des Spektrometers . . . . .	35
3.1.3. Darstellung von RL-Spektren von Feldspäten . . . . .	40
3.2. Radiolumineszenz-Messgerät mit Einzelphotonenzählung . . . . .	41
3.2.1. Aufbau des Messgerätes . . . . .	41
3.2.2. Bestrahlungseinheit . . . . .	42
3.2.3. Kalibration der $^{137}\text{Cs}$ -Quelle . . . . .	45
3.2.4. Detektionseinheit . . . . .	49
3.2.5. Bleicheinrichtung . . . . .	50
3.2.6. Signalverarbeitung und Ablaufsteuerung . . . . .	52
3.3. Radiolumineszenz mit Röntgenstimulation . . . . .	53
3.3.1. Aufbau des Messgerätes . . . . .	54
3.3.2. Röntgenröhre und Röntgengenerator . . . . .	55
3.3.3. Probenhalter und Fokusbestimmung . . . . .	55
3.3.4. Kalibration der Röntgenquelle . . . . .	56

<b>4. Radiolumineszenz</b>	<b>59</b>
4.1. Einführung und grundlegende Modelle . . . . .	59
4.1.1. Infrarot-Radiolumineszenz . . . . .	59
4.2. Verhalten der IR-RL . . . . .	60
4.3. Dosisbestimmung mit der IR-RL . . . . .	62
4.3.1. Dosisbestimmung mit einem kombinierten Ansatz . . . . .	63
4.4. Modifikationen am IR-RL Modell . . . . .	64
4.4.1. Endlicher Grenzwert der IR-RL-Kurve . . . . .	64
4.4.2. Bleichung der IR-RL mit IR-Licht . . . . .	65
4.4.3. Anmerkung zur Modellierung in der Lumineszenzdosimetrie . . . . .	65
<b>5. Grundlagenuntersuchungen</b>	<b>67</b>
5.1. Basismessungen . . . . .	67
5.1.1. Messung der IR-RL und Kurvenanpassung . . . . .	67
5.1.2. Lumineszenzmessungen an den Proben . . . . .	70
5.1.3. TL-, RL- und IRSL-Spektren . . . . .	70
5.1.4. TL-, IRSL-Messungen . . . . .	74
5.2. Ortsaufgelöste Messungen . . . . .	75
5.2.1. Ortsaufgelöste IR-RL Messungen . . . . .	75
5.2.2. Messungen mit dem Rasterelektronenmikroskop . . . . .	76
5.2.3. Korrelation der IR-RL mit Kalifeldspat . . . . .	77
5.3. Sensitivitätsänderungen . . . . .	79
5.3.1. Reproduzierbarkeitsmessungen . . . . .	79
5.3.2. Dosisabhängigkeiten der RL-Emissionen . . . . .	81
5.3.3. Verhalten des roten Peaks . . . . .	83
5.3.4. Filterempfehlungen . . . . .	84
5.4. Bleichbarkeit der IR-RL . . . . .	86
5.4.1. Vergleich der Bleichung von IR-RL und IRSL . . . . .	87
5.5. Temperaturabhängigkeit der IR-RL . . . . .	90
<b>6. Datierungsmessungen</b>	<b>91</b>
6.1. Korrektur der Sensitivitätsänderung . . . . .	91
6.1.1. Berechnung der Äquivalenzdosis . . . . .	91
6.1.2. Bestimmung der Sensitivitätskorrektur mittels Korrektur-	
scheibchen . . . . .	92
6.1.3. Bestimmung der Sensitivitätskorrektur aus den angepas-	
sten Funktionen . . . . .	93
6.1.4. Bestimmung der Sensitivitätskorrektur durch Minimierung . . . . .	93
6.1.5. Abhängigkeit der Äquivalenzdosis von der Sensitivitäts-	
korrektur . . . . .	94
6.2. Datierungen an Grobkorn-Feldspäten . . . . .	94
6.2.1. Bestimmung des internen K-Gehaltes . . . . .	95
6.2.2. Dosisbestimmung und Altersberechnung . . . . .	96
6.2.3. Diskussion der Ergebnisse der Grobkorndatierungen . . . . .	101
6.3. Dosisbestimmung an polymineralischen Feinkornproben . . . . .	105
6.3.1. Diskussion der Ergebnisse der Dosisbestimmung an Fein-	
kornproben . . . . .	112



6.4. Schlussfolgerungen aus den Ergebnissen der Datierungen . . . . .	114
<b>7. Zusammenfassung</b>	<b>117</b>
<b>A. Probenbeschreibung</b>	<b>119</b>
A.1. Allgemeines zu Feldspäten . . . . .	119
A.2. Proben für Grundlagenuntersuchungen . . . . .	120
A.3. Datierungsproben . . . . .	121
A.3.1. Feinkornproben . . . . .	121
A.3.2. Grobkornproben . . . . .	121
<b>B. Konstanten und Berechnungen</b>	<b>123</b>
B.1. Konstanten . . . . .	123
B.2. Statistik . . . . .	123
B.3. Wellenlängen- und Energiedarstellung . . . . .	124
<b>C. Auswertung von Lumineszenzspektren</b>	<b>125</b>
C.1. Überblick über die Auswerteprozedur . . . . .	125
C.2. Korrekturfaktoren für die spektrale Sensitivität . . . . .	126
C.3. Das Auswerteprogramm LumSpec . . . . .	130
<b>D. Messergebnisse</b>	<b>137</b>
D.1. Lumineszenzspektren . . . . .	137
D.2. Verhalten des roten Peaks . . . . .	141
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>143</b>
<b>Danksagung</b>	<b>149</b>



# Abbildungsverzeichnis

2.1. Lumineszenz im Bändermodell . . . . .	21
2.2. Anforderung an das Lumineszenzsignal . . . . .	23
2.3. Aufbau der Wachstumskurve . . . . .	25
3.1. Lumineszenz-Spektrometer . . . . .	34
3.2. Spektrale Verschiebung in der Lumineszenzspektroskopie . . . . .	35
3.3. Auflösungsvermögen des Spektrometers . . . . .	37
3.4. Test der Kalibration des Spektrometers . . . . .	39
3.5. Spektrum der kalibrierten Halogenlampe . . . . .	39
3.6. Test der IR-Kalibration des Spektrometers . . . . .	40
3.7. RL-Spektrum der Probe NoPo . . . . .	41
3.8. RL-Messgerät . . . . .	43
3.9. Dosisaufbau bei $\beta$ -Strahlung . . . . .	45
3.10. Probenträger für RL Messgerät . . . . .	46
3.11. Massen-Bremsvermögen von Quarz und Feldspat . . . . .	48
3.12. Unterschiedliche Probengeometrien . . . . .	48
3.13. Kalibration mit unterschiedlichen Methoden . . . . .	49
3.14. Quanteneffizienz des PMT R943-02 . . . . .	50
3.15. Temperatur- und Hochspannungsverhalten des PMT R943-02 . . . . .	51
3.16. Optische Filter für den IR Bereich . . . . .	51
3.17. Steuerprogramm des RL-Messgerätes . . . . .	52
3.18. Messzyklus des RL-Messgerätes . . . . .	54
3.19. Röntgen-RL-Messgerät . . . . .	54
4.1. Radiolumineszenz im Bändermodell . . . . .	60
4.2. Modell der IRSL . . . . .	61
4.3. RL Wachstumskurve . . . . .	61
4.4. IR-RL Techniken zur Dosisbestimmung . . . . .	62
4.5. IR-RL Kombinationstechnik zur Dosisbestimmung . . . . .	63
5.1. Typische IR-RL Wachstumskurve der Probe G40 . . . . .	68
5.2. Änderung des Fits mit der Messdauer . . . . .	69
5.3. Einschaltvorgang der IR-RL . . . . .	69
5.4. IR-RL von Quarz . . . . .	70
5.5. Spektren der Probe F20 . . . . .	71
5.6. Spektren der Probe G40 . . . . .	72
5.7. Messungen des natürlichen TL-Signals von Feldspäten . . . . .	74
5.8. Messungen des TL-Signals von künstlich bestrahlten Feldspäten . . . . .	75
5.9. Ortsaufgelöste Messungen der Radiolumineszenz für die Probe G40 . . . . .	76

## Abbildungsverzeichnis

5.10. EDX-Elementscan der Probe HDS 702 . . . . .	77
5.11. Ortsaufgelöste Messungen der IR-RL und des Kaliumgehaltes . . .	78
5.12. Reproduzierbarkeit der IR-RL-Wachstumskurve . . . . .	80
5.13. Sensitivitätsänderung bei wiederholter Messung . . . . .	80
5.14. Verhalten der RL-Emissionen mit steigender Dosis . . . . .	81
5.15. Verhalten des roten Peaks . . . . .	84
5.16. Detektion mit empfohlener Filterkombination . . . . .	85
5.17. Beispiel für den Einfluss der roten Emission . . . . .	85
5.18. IR-Bleichen der IR-RL . . . . .	86
5.19. Bleichgeschwindigkeit der IRSL . . . . .	88
5.20. Bleichgeschwindigkeit der RL . . . . .	88
5.21. Temperaturabhängigkeit der RL . . . . .	89
6.1. Abweichung der Äquivalenzdosis bei Variation der Sensitivitäts- korrektur . . . . .	94
6.2. Zusammenhang zwischen Sensitivitätskorrektur und Äquivalenz- dosis . . . . .	95
6.3. Ergebnisse der Datierung der Probe HDS 703 . . . . .	98
6.4. Ergebnisse der Datierung der Probe HDS 704 . . . . .	99
6.5. Ergebnisse der Datierung der Probe HDS 705 . . . . .	99
6.6. Ergebnisse der Datierung der Probe HDS 706 . . . . .	101
6.7. Ergebnisse der Datierung der Probe SLdC1 . . . . .	103
6.8. Die Ergebnisse der Datierungen an Grobkornproben . . . . .	104
6.9. Ergebnisse der Dosisbestimmung der Probe HDS 724 . . . . .	107
6.10. Ergebnisse der Dosisbestimmung der Probe HDS 725 . . . . .	108
6.11. Ergebnisse der Dosisbestimmung der Probe HDS 726 . . . . .	109
6.12. Ergebnisse der Dosisbestimmung der Probe HDS 727 . . . . .	111
6.13. Ergebnisse der Dosisbestimmung der Probe HDS 728 . . . . .	111
6.14. Die Ergebnisse der Feinkorndatierungen . . . . .	113
A.1. Feldspat-Mischkristallsystem . . . . .	120
C.1. Überblick über die Auswertung von Lumineszenzspektren . . . . .	125
C.2. Spektrale Empfindlichkeit ohne Filter . . . . .	126
C.3. Spektrale Empfindlichkeit mit Filter HA 3 . . . . .	127
C.4. Spektrale Empfindlichkeit mit Filter BG 39 . . . . .	127
C.5. LumSpec - Hauptfenster . . . . .	130
C.6. LumSpec - Daten laden . . . . .	131
C.7. LumSpec - Manuelle Kalibration . . . . .	131
C.8. Einfluss von Störsignalen . . . . .	132
C.9. LumSpec - Entfernung von Störsignalen . . . . .	133
C.10. LumSpec - Subtraktion des Untergrundes . . . . .	133
C.11. LumSpec - Korrektur der spektralen Empfindlichkeit . . . . .	134
C.12. LumSpec - Speichern der Daten . . . . .	134
C.13. LumSpec - Drucken der Parameter . . . . .	135
D.1. Spektren der Probe NoPo . . . . .	137
D.2. Spektren der Probe NoSo . . . . .	138

## *Abbildungsverzeichnis*

D.3. Spektren der Probe IdCR1 . . . . .	139
D.4. Spektren der Probe SLdC1 . . . . .	140
D.5. Verhalten des roten Peaks für Probe NoPo . . . . .	141
D.6. Verhalten des roten Peaks für Probe NoSo . . . . .	141



# Tabellenverzeichnis

2.1. Single Aliquot Regeneration Protokoll (SAR) . . . . .	27
2.2. Umrechnungsfaktoren für die Dosisleistung . . . . .	30
3.1. Test der Kalibration des Spektrometers . . . . .	40
3.2. $\beta$ -Zerfälle des $^{137}\text{Cs}$ . . . . .	42
3.3. Schwächung der $\beta$ -Strahlung in Kalifeldspat . . . . .	44
3.4. Massen-Bremsvermögen von Quarz und Feldspat . . . . .	47
3.5. Kalibration der Röntgenquelle . . . . .	56
5.1. Ergebnisse der Experimente zur Sensitivitätsänderung . . . . .	80
5.2. Lage der Emissionen im roten und IR-Spektralbereich einiger Feldspäte . . . . .	82
6.1. Interne K-Gehalte, bestimmt durch EDX-Analyse . . . . .	96
6.2. Ergebnisse der Altersbestimmung der Probe HDS 703 . . . . .	100
6.3. Ergebnisse der Altersbestimmung der Probe HDS 704 . . . . .	100
6.4. Ergebnisse der Altersbestimmung der Probe HDS 705 . . . . .	100
6.5. Ergebnisse der Altersbestimmung der Probe HDS 706 . . . . .	102
6.6. Ergebnisse der Altersbestimmung der Probe SLdC1 . . . . .	102
6.7. Ergebnisse der Dosisbestimmung der Probe HDS 724 . . . . .	107
6.8. Ergebnisse der Dosisbestimmung der Probe HDS 725 . . . . .	109
6.9. Ergebnisse der Dosisbestimmung der Probe HDS 726 . . . . .	110
6.10. Ergebnisse der Dosisbestimmung der Probe HDS 727 . . . . .	110
6.11. Ergebnisse der Dosisbestimmung der Probe HDS 728 . . . . .	112
6.12. Überblick über die Alter der Feinkornproben . . . . .	114
A.1. Feldspatproben für Grundlagenuntersuchungen . . . . .	120
C.1. Detektionsbereiche des Spektrometers . . . . .	129





# 1. Einleitung

Kenntnisse über die sich ändernde Umwelt basieren auf der Rekonstruktion von Prozessen und Systemzuständen in der Vergangenheit. Die anthropogenen Einflüsse auf Klima und Landschaft lassen sich nur durch genaue Kenntnis der Vorgänge von natürlich auftretenden Veränderungen und Fluktuationen trennen.

Ein wichtiger Teil solcher Rekonstruktionen ist die zeitliche Fixierung von Ereignissen. Es werden zuverlässige Datierungsmethoden für unterschiedlichste Zeitabschnitte, Materialien und Vorgänge benötigt. Einen Überblick über die Methoden zur Datierung im Bereich der letzten etwa 2 Millionen Jahre gibt Wagner (1998). Eine dieser Methoden ist die Lumineszenzdatierung. Die Lumineszenzdatierung erlaubt unter anderem die Datierung von Um- und Ablagerungen von Sedimenten im Zeitbereich von wenigen hundert Jahren bis hin zu einigen hunderttausend Jahren und stellt damit ein wichtiges Werkzeug zur Rekonstruktion der Landschaftsentwicklung in der Vergangenheit dar.

Obwohl die Lumineszenzdatierung in vielen Anwendungen wichtige Ergebnisse geliefert hat, befindet sich die Methode weiterhin in der Entwicklung. Dabei stehen Probleme, die die Anwendung der Methode auf bestimmte Proben verhindern, und die Verbesserung der Präzision im Vordergrund. In diesen Zusammenhang ist die vorliegende Arbeit eingebettet. Durch die junge Methode der Radiolumineszenz (RL) soll zum einen das Spektrum unterschiedlicher Lumineszenzverfahren erweitert und ergänzt werden, zum anderen soll die Radiolumineszenz als Werkzeug zur Untersuchung der Grundlagen der Lumineszenzdatierung vorgestellt werden.

Bei der Radiolumineszenz erfolgt die Beobachtung der Lumineszenz während der Bestrahlung des Materials mit ionisierender Strahlung. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde dabei vor allem die Radiolumineszenzemission von Feldspäten im infraroten Spektralbereich (IR-RL) untersucht.

Trautmann et al. (1999) vermuten hinter dieser IR-RL-Emission einen direkten Übergang von Elektronen in eine dosimetrische Elektronenfalle. Damit könnte zum ersten mal die direkte Bestimmung des Füllungszustandes einer Elektronenfalle mit Hilfe der Lumineszenz gelingen. Bei den bisher eingesetzten Verfahren müssen die Elektronen zunächst aus der Falle befreit werden, damit sie über das Leitungsband in sogenannte Rekombinationszentren gelangen können, um dabei Lumineszenz zu emittieren. Die ‚Einstufigkeit‘ des Prozesses der Radiolumineszenz macht ihn auch für die Grundlagenforschung interessant, da so der Prozess der Rekombination isoliert untersucht werden kann.

## 1. Einleitung

### Ausgangspunkt der Arbeit

Motivation dieser Arbeit waren erste Berichte über Radiolumineszenzuntersuchungen an Feldspäten (Trautmann et al., 1998) sowie erste Ideen zur dosimetrischen Nutzung der infraroten Radiolumineszenzemission von Feldspäten (T. Trautmann, Tagungsbeitrag, 4. Lumineszenz- und ESR-Datierungskolloquium, 23.10.-25.10.1998, Dresden). Eigene Vorarbeiten in Richtung der Radiolumineszenz (Schilles, 1998) gaben schließlich den Ausschlag, den Ansatz weiter zu verfolgen. Alle bis zu diesem Zeitpunkt bekannten Ergebnisse basierten auf spektroskopischen Messungen. Um genauere Messungen durchführen zu können, stand deshalb die Entwicklung eines Präzisions-RL-Messgerätes, basierend auf Einzelphotonenzählung, an erster Stelle. Dabei sollten zu verschiedenen Punkten, die in der Arbeit von Trautmann (1999) aufgefallen waren, alternative Lösungen gefunden werden, die zuverlässigere Messungen erlauben. Zu diesen Punkten gehört die Probengeometrie während der Messung und insbesondere die Kalibration der eingesetzten Strahlenquelle. Ein weiteres Ziel war die Durchführung von Tests und Grundlagenuntersuchungen zur (IR-)Radiolumineszenz. Schließlich sollten erste Dosisbestimmungen durchgeführt werden.

### Übersicht über die Arbeit

Das folgende Kapitel 2 gibt einen kurzen Abriss der Lumineszenzdatierung. Beispielfhaft werden dabei einzelne Verfahren erläutert, wie sie aktuell zur Datierung eingesetzt werden. Dadurch werden die Gemeinsamkeiten, vor allem aber die Unterschiede zur Radiolumineszenzdatierung deutlich, deren theoretisches Gerüst in Kapitel 4 erläutert wird. Da durch die Radiolumineszenzdatierung grundlegend andere Anforderungen an die Messtechnik gestellt werden und geeignete Messgeräte für diese neue Methode nicht zur Verfügung standen, mussten Messgeräte sowohl für die Datierungsmessungen als auch für grundlegende Untersuchungen von Materialeigenschaften zum Teil neu entwickelt und aufgebaut werden oder bestehende Geräte für die neuen Anforderungen modifiziert werden. Mit diesen sehr umfangreichen Arbeiten beschäftigt sich Kapitel 3.

Die Experimente zu grundlegenden Eigenschaften der Radiolumineszenz und der infrarot Radiolumineszenz von Feldspäten im speziellen sowie Tests von Materialeigenschaften, die die Grundlage der Dosisbestimmung bilden, sind in Kapitel 5 über Grundlagenuntersuchungen zusammengestellt. Die Ergebnisse erster Datierungen und Dosisbestimmungen finden sich im abschließenden Kapitel 6.

## 2. Grundlagen der Lumineszenzdatierung

### 2.1. Physikalische Grundlagen

Jeder Körper strahlt bei einer gegebenen Temperatur ein charakteristisches Spektrum elektromagnetischer Strahlung ab, die sogenannte Planck'sche Wärmestrahlung. Als Lumineszenz eines Materials bezeichnet man die Abstrahlung von elektromagnetischer Strahlung zusätzlich zu dieser Wärmestrahlung (meist im Bereich des IR-, sichtbaren und UV-Spektralbereiches).

Das Auftreten von Lumineszenzemissionen ist uns allen aus dem Alltag wohl bekannt. Die Bildröhre des Fernsehers, Leuchtstoffröhren, selbst Waschmittel (Weißmacher) basieren auf Lumineszenzeffekten. Im Falle der Bildröhre trifft ein Elektronenstrahl auf einen Phosphor (Materialien, die Lumineszenzemissionen zeigen, werden als Phosphor bezeichnet). Die Elektronen des einfallenden Strahls geben dabei Energie an Elektronen des Phosphors ab und regen diese damit in einen höheren Energiezustand an. Bei der sofort anschließenden Rekombination mit einem Lochelektron, das durch die Anregung geschaffen wurde, wird sichtbares Licht frei, das wir mit dem Auge wahrnehmen können. Eine Einführung in die Physik der Lumineszenz gibt Riehl (1971). Eine tiefer gehende Beschreibung und ein Überblick über Anwendungen in den verschiedensten Bereichen geben Blasse und Grabmaier (1994).

Um den Effekt der Lumineszenz für eine Datierungsanwendung einsetzen zu können, ist eine besondere Eigenschaft des Phosphors erforderlich. Er muss die Energie, die ihm durch die Anregung seiner Elektronen zugeführt wird, über einen (für die Datierung) ausreichend langen Zeitraum speichern können und erst durch eine weitere äußere Stimulation darf es zur Aussendung der Lumineszenz kommen.

Diese Eigenschaften besitzen zum Beispiel die natürlichen Phosphore Quarz und Feldspat. Diese nicht leitenden Festkörper können Energie, die ihnen in der Natur aufgrund von ionisierender Strahlung zugeführt wird (natürliche Radioaktivität), speichern und akkumulieren, die dann erst wieder durch eine geeignete Stimulation (d.h. Energiezufuhr) freigesetzt werden kann. In der Praxis wird diese Stimulation durch Erhitzen oder durch optische Anregung erreicht. Durch die Stimulation wird die gespeicherte Energie in den Kristallen freigesetzt und bei der Rekombination teilweise als sichtbare Lumineszenz emittiert. Dabei steht die Menge der emittierten Lichtquanten in einer eindeutigen Beziehung zu der vom Material zuvor absorbierten Energie.

Das bedeutet, dass aus der Anzahl der meßbaren Lichtquanten auf die vom Material absorbierte Energie geschlossen werden kann. Diese Energie wiederum

## 2. Grundlagen der Lumineszenzdatierung

steht in direktem Zusammenhang mit der Zeitdauer, der das Material der ionisierenden Strahlung ausgesetzt war. Vorausgesetzt die Stärke der ionisierenden Strahlung ist über den zu datierenden Zeitraum bekannt, so kann die Zeitdauer der Bestrahlung bestimmt werden.

Da bei einer Datierung ein exakt definiertes Ereignis bestimmt werden soll, ist es entscheidend, dass die Energie, die im Phosphor gespeichert ist, durch dieses Ereignis ‚gelöscht‘ wird. Im Falle der Lumineszenzdatierung entsprechen die Mechanismen der Nullstellung des Materials den Prozessen der Stimulation. Das bedeutet, durch Erhitzen oder durch optische Anregung wird die ‚Uhr‘ zurückgestellt. Ereignisse, die durch die Lumineszenzdatierung bestimmt werden können, sind deshalb zum Beispiel der Brennvorgang von Keramik oder Ton sowie die Belichtung von Sedimenten bei der Um- und Ablagerung.

### 2.1.1. Modellvorstellungen

Als Modell für die Beschreibung der Effekte der Lumineszenzdatierung wird das Bändermodell des Festkörpers herangezogen. Für einen idealen Quarz- oder Feldspatkristall besteht das Modell nur aus dem vollständig gefüllten Valenzband und dem vollständig leeren Leitungsband. Beide Bänder sind, da es sich bei den Materialien um Isolatoren handelt, durch eine so große Bandlücke getrennt, dass die Wahrscheinlichkeit für eine thermische Anregung von Elektronen aus dem Valenz- ins Leitungsband bei normalen Umgebungstemperaturen extrem gering ist.

Reale Kristalle weichen stark vom idealen Fall ab. Durch eine Vielzahl von Effekten wird das Kristallgitter verändert. Es können Fremdatome in das Kristallgitter eingebaut werden. Sie nehmen reguläre Gitterplätze oder Zwischengitterstellen ein, durch mechanische Einflüsse kommt es zu Gitterstörungen wie zum Beispiel Versetzungen. All diese und viele weitere Effekte können zur Bildung von zusätzlichen lokalisierten Energieniveaus führen, die außerhalb der idealen Bandstruktur angesiedelt sind. Interessant für die Lumineszenzdatierung sind dabei zwei Fälle (siehe auch Abb. 2.1):

1. Energiezustände knapp unterhalb des Leitungsbandes, die sogenannten Elektronenfallen.
2. Energiezustände oberhalb des Valenzbandes, die im Grundzustand mit Elektronen besetzt sind.

Dieses System bildet den Ausgangszustand für den Mechanismus der Lumineszenzdatierung. Alle Zustände unterhalb des Fermi-niveaus, das zwischen Valenz- und Leitungsband liegt, sind durch Elektronen besetzt, alle Zustände oberhalb des Fermi-niveaus sind leer.

Nun wird dieser Kristall ionisierender Strahlung ausgesetzt. Dadurch wird Elektronen im Valenzband Energie zugeführt, wodurch sie ins Leitungsband angeregt werden. In der Regel wird ein angeregtes Elektron umgehend wieder ins Valenzband zurückfallen, einige dieser Elektronen gelangen aber auch in die Elektronenfallen. Gleichmaßen wird ein Teil der durch die Anregung im

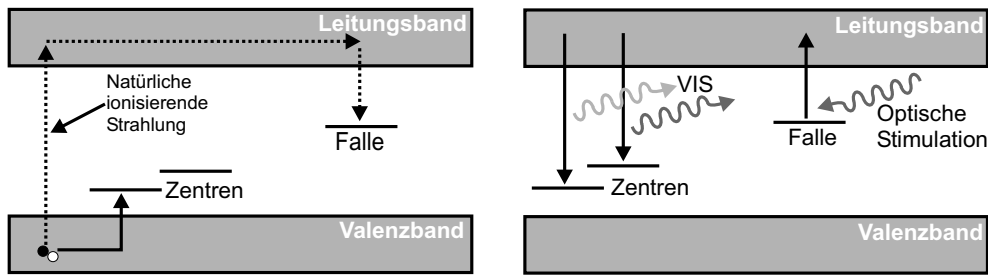


Abbildung 2.1.: **Lumineszenz im Bändermodell.** Links: Die Vorgänge in der Natur. Durch ionisierende Strahlung werden Elektron-Loch-Paare gebildet. Die Elektronen gelangen über das Leitungsband z.T. in die Fallen, die Löcher bilden die Rekombinationszentren. Rechts: Bei der Stimulation im Labor werden Elektronen wieder ins Leitungsband freigesetzt und gelangen z.T. in die Rekombinationszentren. Dabei emittieren sie Lumineszenz.

Valenzband entstehenden Lochelektronen den Weg in die Energiezustände oberhalb des Valenzbandes finden. Wird ein solcher Zustand durch ein Lochelektron besetzt, spricht man von einem Rekombinationszentrum.

Ist die Energiedifferenz zwischen Elektronenfälle und Unterkante des Leitungsbandes ausreichend groß, ist die Wahrscheinlichkeit für eine thermische Anregung äußerst gering, d.h. das Elektron wird für lange Zeit in der Falle gespeichert.

Im Labor wird nun der Kristall durch Erhitzen oder optische Anregung stimuliert, d.h. den Elektronen in den Fallen wird Energie zugeführt, wodurch sie ins Leitungsband angehoben werden. Von dort können die Elektronen mit den Lochelektronen in den Rekombinationszentren rekombinieren und dabei Lumineszenzlicht emittieren.

In dieser einfachsten Beschreibung werden viele weitere mögliche Mechanismen und Effekte nicht berücksichtigt, die für ein grundlegendes Verständnis nicht erforderlich sind. Auf einige dieser zusätzlichen Mechanismen wird in Kapitel 4 eingegangen. Eine ausführliche Beschreibung des theoretischen Hintergrundes der Thermolumineszenz, einschließlich eines Überblicks über unterschiedlichste Modelle gibt McKeever (1985). Einen aktuelleren Überblick mit einer großen Anzahl an Verweisen und Einführungen in neuere Entwicklungen sind in Chen und McKeever (1997) zu finden.

### 2.1.2. Begriffserläuterungen

Der Begriff der Lumineszenz wird phänomenologisch in Fluoreszenz und Phosphoreszenz unterteilt. Unter Fluoreszenz wird dabei die der Anregung unmittelbar folgende Lumineszenzemission verstanden, unter Phosphoreszenz die zeitlich verzögerte Lumineszenzemission<sup>1</sup>. Unterschieden wird auch zwischen verschie-

<sup>1</sup>Riehl (1971) gibt als Lebensdauer der Zustände etwa  $10^{-9}$  s an, etwa in diesem Zeitbereich erfolgt die Fluoreszenzemission (als Abgrenzung zur Čerenkov-Strahlung und zu Streueffekten, bei denen die Zeit bis zur Emission im Bereich von etwa  $10^{-14}$  s liegt).

## 2. Grundlagen der Lumineszenzdatierung

denen Anregungsmechanismen, d.h. den Prozessen, durch die die Energie im Material deponiert wird, die letztlich zur Lumineszenzemission führt. Wird die Lumineszenz durch ionisierende Strahlung erzeugt, spricht man von Radiolumineszenz, bei Anregung durch mechanische Arbeit von Tribolumineszenz, bei Anregung durch chemische Prozesse von Chemolumineszenz und bei der Anregung durch Elektronen von Kathodolumineszenz.

In all diesen Fällen kann unmittelbar während der Anregung Lumineszenz (Fluoreszenz) beobachtet werden. Besitzt der Phosphor nun aber die Eigenschaft, angeregte Elektronen, wie im oben beschriebenen Modell speichern zu können, kann durch eine spätere Stimulation erneut Lumineszenz erzeugt werden. Diese Effekte werden wiederum nach der Art der Stimulation unterteilt: *Thermisch stimulierte Lumineszenz (TL)* bei Stimulation durch Erhitzen der Probe, *optisch stimulierte Lumineszenz (OSL)* bei optischer Anregung und als ein Spezialfall der OSL die *infrarot stimulierte Lumineszenz (IRSL)*.

Die bei der Lumineszenzdatierung eingesetzten Methoden müssten also korrekt als thermisch stimulierte Radiolumineszenz und als optisch stimulierte Radiolumineszenz bezeichnet werden, in der Praxis haben sich jedoch die Begriffe Thermolumineszenz (TL) und optisch stimulierte Lumineszenz (OSL) durchgesetzt, da bei Datierungsanwendungen die Anregung der Lumineszenz durch ionisierende Strahlung bereits vorgegeben ist.

### 2.1.3. Anforderungen an die Datierungsmethode

Das oben beschriebene Modell bildet die Basis für die Methode der Lumineszenzdatierung. Die tatsächlich messbaren Effekte weichen mehr oder weniger stark von diesem Modell ab und sind sehr stark vom individuellen System abhängig, d.h. den Materialeigenschaften der Probe. Dennoch können drei grundsätzliche Bedingungen formuliert werden, die das jeweilige System erfüllen muss, wenn es für Datierungszwecke (oder andere dosimetrische Anwendungen) eingesetzt werden soll (siehe dazu auch Abb. 2.2):

1. **Rückstellung.** Das Signal, das zur Datierung herangezogen werden soll, muss durch klar definierte Umstände vollständig zurückgestellt werden. Diese Rückstellung sollte idealerweise in einem möglichst kurzen Zeitraum erfolgen, nur so kann die Nullstellung einem einzelnen Ereignis zugeordnet werden.
2. **Stabilität.** Eine ausreichende Stabilität des Datierungssignals muss gegeben sein. Dazu sollte die mittlere Lebensdauer eines Elektrons in der Elektronenfalle ein mehrfaches des Datierungszeitraumes umfassen.
3. **Funktionaler Zusammenhang.** Zwischen dem Datierungssignal und der applizierten Dosis muss ein funktionaler, d.h. eindeutiger Zusammenhang bestehen. Im Idealfall ist dieser Zusammenhang für ein bestimmtes Material explizit bekannt.

Diese Kriterien bilden die Grundvoraussetzung für die Datierbarkeit eines Materials und müssten im Idealfall für jede einzelne Probe geprüft werden.

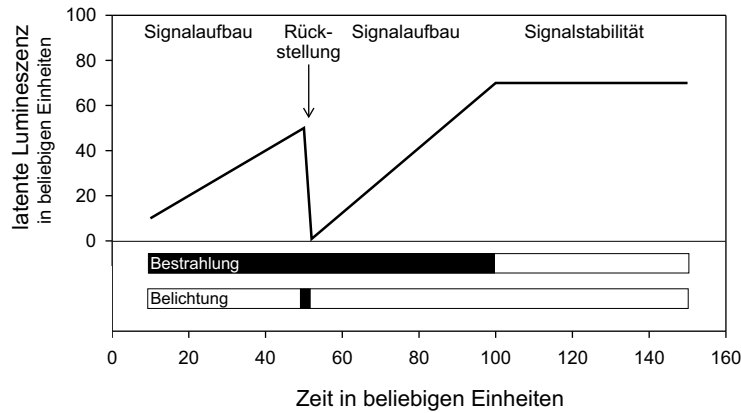


Abbildung 2.2.: **Anforderungen an das Lumineszenzsignal.** Durch Bestrahlung kommt es zum Signalaufbau. Durch ein definiertes Ereignis (hier durch Belichtung) kommt es zur vollständigen Rückstellung des Signals, anschließend zum erneuten Aufbau. Nach Ende der Bestrahlung soll das Signal stabil bleiben.

#### 2.1.4. Altersgleichung

Die grundlegende Altersgleichung der Lumineszenzdatierung, die sich aus dem Modell ergibt, besitzt eine sehr einfache Form:

$$A = \frac{D_E}{\dot{D}} \quad (2.1)$$

Das Alter  $A$  einer Probe ergibt sich als Quotient aus Äquivalenzdosis  $D_E$  und Dosisleistung  $\dot{D}$  (in der hier benutzten Form ist  $\dot{D}$  über den gesamten Datierungszeitraum konstant). Als Äquivalenzdosis wird die im Labor der Probe applizierte Dosis bezeichnet, die das gleiche Lumineszenzsignal erzeugt, das auch die Messung der natürlichen Probe ergeben hat. Es wird davon ausgegangen, dass die Äquivalenzdosis somit der Dosis entspricht, die die Probe in der Natur erhalten hat (die sogenannte Palaeodosi). Dabei muss berücksichtigt werden, dass die natürliche ionisierende Strahlung aus unterschiedlichen Strahlungsarten und Energien besteht, im Labor hingegen meist eine  $\beta$ - oder  $\gamma$ -Quelle mit nur einem Nuklid eingesetzt wird.

Die Dosisleistung ist die Dosis pro Zeit, die die Probe in der natürlichen Umgebung absorbiert hat. In Umgebungen mit hoher natürlicher Radioaktivität wird eine bestimmte Dosis schneller in der Probe akkumuliert als in einer Umgebung mit schwächerer natürlicher Radioaktivität. Deshalb ist der Faktor der Dosisleistung notwendig, um aus einer Äquivalenzdosis auf das Alter zu schließen. Für eine Altersbestimmung mittels TL oder OSL müssen daher zwei Messgrößen bestimmt werden. Die einfache Gleichung soll jedoch nicht über die Tatsache hinwegtäuschen, dass die Bestimmung dieser zwei Messgrößen mit erheblichem Aufwand und Schwierigkeiten verbunden ist. Einen groben Überblick

## 2. Grundlagen der Lumineszenzdatierung

über die Methoden zur Bestimmung der beiden Messgrößen geben die folgenden zwei Kapitel.

### 2.2. Bestimmung der Äquivalenzdosis

In diesem Abschnitt soll die prinzipielle Vorgehensweise zur Ermittlung der Äquivalenzdosis erläutert werden, da diese Konzepte auch bei der IR-RL ihre Verwendung finden. Ein zentrales Hilfsmittel stellt hierbei die Wachstumskurve dar. Am Ende des Abschnittes wird exemplarisch ein Messprotokoll der OSL erläutert, wie es derzeit bei Datierungen zum Einsatz kommt. Einen Überblick über die Fülle der verschiedenen Protokolle zur Äquivalenzdosisbestimmung der OSL und ebenso umfangreiche Hinweise auf weitere Literatur gibt Aitken (1998). Eine Einführung in die Thermolumineszenzdatierung gibt Aitken (1985).

#### 2.2.1. Die Wachstumskurve

Vergleicht man die Lumineszenzemissionen unterschiedlicher Proben, die alle mit der selben Dosis bestrahlt wurden, stellt man fest, dass jede Probe ein anderes Verhalten zeigt. Es gibt keinen universellen Zusammenhang zwischen Dosis und Lumineszenzsignal für bestimmte Materialien wie zum Beispiel Quarz oder Feldspat. Man wird also für jede einzelne Datierungsprobe den Zusammenhang zwischen diesen beiden Größen bestimmen müssen. Die Kalibrationskurve eines Materials, die den Zusammenhang zwischen Lumineszenzsignal und applizierter Dosis darstellt, nennt man Wachstumskurve. Ist diese Wachstumskurve für ein bestimmtes Probenmaterial bekannt, kann nach Messung des Lumineszenzsignals über die Kurve auf die absorbierte Dosis rückgeschlossen werden.

In der Praxis haben sich parallel viele verschiedene Techniken zur Bestimmung der Wachstumskurve entwickelt, die hier nur kurz angerissen werden können. Alle diese Techniken basieren aber auf dem selben Prinzip. Das Material wird im Labor mit künstlichen, bekannten Dosen bestrahlt und das zugehörige Lumineszenzsignal gemessen.

Hier kann grob zwischen zwei Klassen von Techniken zur Bestimmung der Wachstumskurve unterschieden werden.

1. **Additive Techniken:** Hierbei werden der natürlichen Probe *zusätzlich* zu der in der Natur erhaltenen Dosis künstliche Dosen appliziert. Nachteil dieser Methode ist, dass die Wachstumskurve nur im Dosisbereich oberhalb der natürlichen Dosis aufgebaut werden kann und zur Ermittlung der Äquivalenzdosis die Wachstumskurve extrapoliert werden muss (Abb. 2.3).
2. **Regenerative Technik:** Hier wird die natürliche Dosis der Probe gemessen, anschließend wird die Probe vollständig zurückgesetzt. Dann werden der Probe mehrfach unterschiedliche aber bekannte Dosen appliziert und das zugehörige Lumineszenzsignal gemessen. Die Dosen, die zur Bestimmung der Wachstumskurve dienen, werden also immer einer rückgestellten Probe appliziert. Der Vorteil ist, dass auch Dosen kleiner als die natürliche



## 2.2. Bestimmung der Äquivalenzdosis

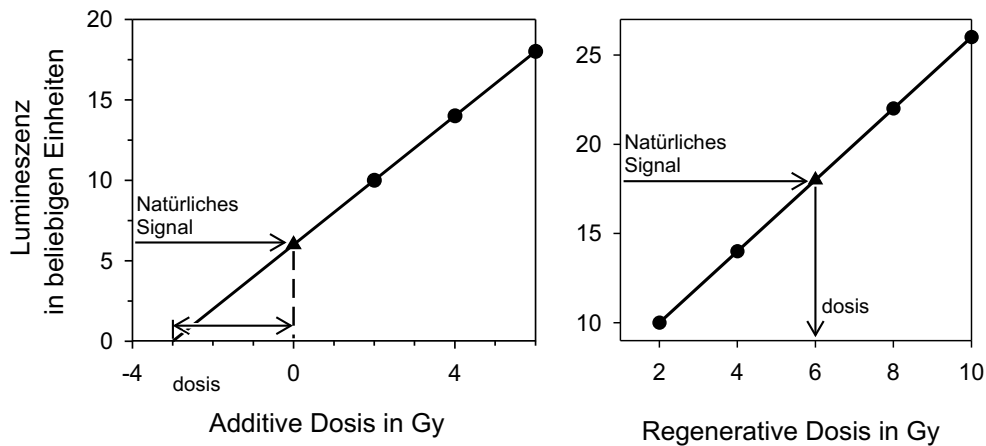


Abbildung 2.3.: **Additive Wachstumskurve (links)**. Zunächst erfolgt die Messung des natürlichen Signals (Dreieck). Anschließend werden mehrere additive Dosen appliziert und das Lumineszenzsignal gemessen (Punkte). An diese additiven Punkte wird eine Funktion angepasst, diese wird extrapoliert und das natürliche Signal eingepasst. **Regenerative Wachstumskurve (rechts)**. Auch hier wird das natürliche Signal gemessen bis das Signal vollständig gelöscht ist, dann wird die Probe mehrfach mit bekannten Dosen bestrahlt und das zugehörige Lumineszenzsignal gemessen. Durch diese regenerativen Dosispunkte wird eine Wachstumskurve aufgebaut, in die das natürliche Signal eingepasst wird.

Dosis appliziert und gemessen werden können und somit die Wachstumskurve auch im Dosisbereich unterhalb der natürlichen Dosis bestimmt werden kann (Abb. 2.3). Die Bestimmung der Äquivalenzdosis erfolgt somit durch eine Interpolation. Nachteil dieser Methode sind die auftretenden Sensitivitätsänderungen, die durch die Rückstellung der Probe erzeugt werden können.

### 2.2.2. Sensitivitätsänderungen

Viele Materialien reagieren auf die Messprozeduren sehr empfindlich, d.h. das Lumineszenzverhalten der Probe wird durch die Messung selbst verändert (siehe z.B. Richardson (1994)). Dieser problematische Effekt wird als Sensitivitätsänderung bezeichnet. Es gibt verschiedene Ansätze, um das Problem der Sensitivitätsänderung zu lösen. Zum einen ist es möglich, das Material jeweils nur einer Messung zu unterziehen, um Änderungen am Material zu minimieren. Zum anderen kann versucht werden, das Ausmaß der Sensitivitätsänderungen zu erfassen und die Messergebnisse entsprechend zu korrigieren.

### 2.2.3. Normierung

Bei der Lumineszenzdatierung liegen die Proben meist in Form von Mineralkörnern in der Größenordnung um  $10\text{ }\mu\text{m}$  (Feinkorn) oder  $100\text{ }\mu\text{m}$  (Grobkorn)

## 2. Grundlagen der Lumineszenzdatierung

vor. Die Proben werden auf Stahl- oder Aluminiumscheibchen (etwa 10 mm Durchmesser) präpariert.

Bei bestimmten Verfahren (den sogenannten Multiple-Aliquot Techniken) ist es nötig, Messungen an unterschiedlichen Teilproben miteinander zu vergleichen. Dies erfordert die Herstellung möglichst exakt gleichartiger Teilproben. Da dies nicht ideal gelingt, muss mit einer Normierung gearbeitet werden. Im einfachsten Fall werden die Massen der Teilproben exakt gemessen und daraus werden Korrekturfaktoren bestimmt (Gewichtsnormierung). Bei der Beurteilung dieser Methode muss bedacht werden, dass innerhalb bestimmter Proben nur ein kleiner Teil der Mineralkörner ein Lumineszenzsignal zeigt. Dies kann bei geringen Probenmengen zu starken Schwankungen in der Anzahl der leuchtenden Körner innerhalb verschiedener Teilproben führen, obwohl alle Teilproben die gleiche Masse besitzen.

Bei der sogenannten Dosisnormierung werden alle Teilproben (meist nach Abschluss der Messungen) nochmals so bestrahlt, dass alle Teilproben in der Summe die selbe Dosis während des Messzyklusses erhalten haben. Danach werden alle Teilproben vollständig zurückgesetzt und mit der gleichen Dosis bestrahlt. Anschließend wird nochmals das Lumineszenzsignal gemessen, um einen Korrekturfaktor zu bestimmen. Bei diesem Verfahren ist wiederum der Effekt der Sensitivitätsänderung zu beachten.

Insgesamt kann festgestellt werden, dass alle Normierungsverfahren mit erheblichen Unsicherheiten behaftet sind. Dies war die Motivation für die Entwicklung von Techniken, die eine Äquivalenzdosisbestimmung an einer einzelnen Teilprobe erlauben. Solche Verfahren werden als Single-Aliquot Techniken bezeichnet. Dabei wird per definitionem das Problem der Normierung umgangen, jedoch müssen zwangsläufig an einer Teilprobe mehrere Messungen durchgeführt werden. Die dabei auftretenden Sensitivitätsänderungen müssen berücksichtigt und korrigiert werden.

### 2.2.4. Aufbau der Wachstumskurve

Exemplarisch soll hier nun ein Messverfahren ausführlicher besprochen werden, das auch bei der Kalibration einer Strahlenquelle verwendet wurde (Kapitel 3.2.3). Dabei handelt es sich um das so genannte Single-Aliquot Regeneration Protocol (SAR) nach Murray und Wintle (2000), das für Quarz-Grobkornmaterial entwickelt wurde. Hierbei wird für jede Teilprobe eine Äquivalenzdosis bestimmt. Dabei wird zunächst das natürliche Lumineszenzsignal vollständig ausgelesen. Anschließend erhält die Probe verschiedene bekannte Dosen im Labor. Aus den Ergebnissen der Lumineszenzmessungen nach künstlicher Bestrahlung wird eine Wachstumskurve aufgebaut. In diese Wachstumskurve wird dann das gemessene natürliche Lumineszenzsignal eingepasst und so auf die Äquivalenzdosis geschlossen. Bei diesen mehrfach ausgeführten Messzyklen kann es zu Sensitivitätsänderungen im Probenmaterial kommen.

Um diese Änderungen zu erfassen, wird nach jeder Messung eine (innerhalb einer Messreihe konstante) Testdosis aufgebracht und anschließend deren Lumineszenzsignal bestimmt (Tabelle 2.1). So wird für jede Einzelmessung ein Korrekturfaktor bestimmt, mit dem die jeweilige Messung korrigiert wird. Für

## 2.3. Bestimmung der Dosisleistung

Tabelle 2.1.: **SAR-Protokoll.** Schritte eines Messzyklusses des SAR Protokolls nach Murray und Wintle (2000). Beim ersten Messzyklus entfällt Schritt 1, so dass bei Schritt 3 das natürliche Signal  $L_0$  gemessen wird.

Schritt	Vorgang
1	Bestrahlung mit Dosis $D_i$
2	Vorheizen
3	Stimulation (OSL) liefert Signal $L_i$
4	Bestrahlung mit Testdosis $D_i^t$
5	Vorheizen
6	Stimulation (OSL) liefert Testsignal $L_i^t$
7	nächster Zyklus (Start bei 1)

den Aufbau der Wachstumskurve wird somit für den Dosispunkt  $D_i$  statt des Signals  $L_i$  der Wert

$$C_i = \frac{L_i}{L_i^t} \quad (2.2)$$

verwendet.

Die Annahme, die diesem Verfahren zugrunde liegt, geht davon aus, dass durch die Testmessungen keine weiteren Sensitivitätsänderungen erzeugt werden. Außerdem werden die Sensitivitätsänderung, die zwischen der Bestrahlung in der Natur und dem ersten Messzyklus entstanden sind, nicht erfasst. Das Verfahren wurde von Dr. Markus Fuchs an der Forschungsstelle Archäometrie getestet und für die speziellen Anwendungen leicht modifiziert. Die Ergebnisse zeigen eine zuverlässige Anwendbarkeit des Protokolls im unteren Dosisbereich (Fuchs, 2001).

## 2.3. Bestimmung der Dosisleistung

Die Bestimmung der Dosisleistung soll hier soweit erläutert werden, wie sie für die Datierungen in Kapitel 6 benötigt wird. Spezielle Aspekte, wie zum Beispiel das weite Feld der radioaktiven Ungleichgewichte, werden hier nicht erläutert. Als Standardwerk für die Dosisleistungsbestimmung in der Lumineszenzdatierung kann Aitken (1985) genannt werden. Aktuelle Entwicklungen zeigt die Arbeit von Kalchgruber (2001).

### 2.3.1. Quellen der Dosisleistung

Die Dosisleistung am Ort der Probe wird aus verschiedenen Quellen gespeist. Zum einen existiert die ionisierende Strahlung, die beim Zerfall der Nuklide der natürlichen Zerfallsreihen von  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  und  $^{232}\text{Th}$  freigesetzt wird. Einen weiteren Beitrag liefern andere natürlich vorkommende Nuklide. Den wesentlichen Anteil hierbei liefern das  $^{40}\text{K}$  und das  $^{87}\text{Rb}$ . Alle bisher besprochenen Quellen können sowohl im Sediment, das die Probe umgibt, auftreten, als auch in den

## 2. Grundlagen der Lumineszenzdatierung

Probenkörnern selbst (hier vor allem der interne  $^{40}\text{K}$ -Gehalt von Kalifeldspäten). Einen zumeist untergeordneten Stellenwert hat die kosmische Strahlung (Prescott und Hutton, 1994), in besonderen Fällen (z.B. Sedimente aus polnaher Lage mit geringer Überdeckung und geringen Beiträgen aus den anderen Quellen) kann die kosmische Strahlung einen starken Einfluss auf die Dosisleistung haben.

Ein weiterer wichtiger Faktor ist der Wassergehalt der Probe. Die Energieabsorption in den Poren des Probenmaterials hängt stark davon ab, ob diese Poren wasser- oder luftgefüllt sind, was zu einer Veränderung der effektiven Dosisleistung führt. Der Wassergehalt der Probe kann jedoch lediglich am aktuellen System bestimmt werden. Aussagen über Entwicklungen in der Vergangenheit können nur selten (aride Gebiete, limnische Sedimente) mit hoher Sicherheit getroffen werden. In vielen Fällen wird durch die Unsicherheit in der Simulation des Wassergehaltes der Probe ein erheblicher Fehler in die Altersbestimmung eingeführt.

### 2.3.2. Bestimmung der Dosisleistung und der Nuklidgehalte

All diese Faktoren müssen bei der Bestimmung der Dosisleistung am Probenort berücksichtigt werden. Es liegt daher nahe, die Dosisleistung direkt am Ort der Probe mit einem geeigneten Meßsystem zu bestimmen. Zu diesem Zweck werden bei der Probenentnahme in-situ-Messungen mit einem NaJ- $\gamma$ -Spektrometer durchgeführt. Diese Messgeräte besitzen jedoch ein zu geringes Auflösungsvermögen, um Ungleichgewichte in den Zerfallsreihen, wie sie in natürlichen Systemen vorkommen können, detektieren zu können. Dies führt dazu, dass in den meisten Fällen die Bestimmung der Dosisleistung im Labor stattfindet.

Um die Dosisleistung berechnen zu können, werden die Gehalte an relevanten Nukliden bestimmt. Dabei kommen verschiedene Methoden zum Einsatz. Durch  $\alpha$ - und  $\beta$ -Zählung können die jeweiligen Aktivitäten des Probenmaterials bestimmt werden. Weitergehende Informationen erhält man bei der Low-Level- $\gamma$ -Spektrometrie. Neben der Ermittlung der Nuklidgehalte können hier Aussagen über Gleich- oder Ungleichgewichte in den natürlichen Zerfallsreihen getroffen werden. Weitere Methoden zur Nuklidbestimmung sind Atom-Absorptions-Spektroskopie (AAS, zur Bestimmung des  $^{40}\text{K}$ -Gehaltes), Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) sowie massenspektrometrische Verfahren (ICPMS, inductively coupled plasma mass spectrometry). Eine weitere Methode für die Bestimmung der  $^{40}\text{K}$ -Gehalte der Feldspatproben wurde in dieser Arbeit verwendet, die Bestimmung mittels EDX-Messungen (Energie-Dispersive-Röntgenfluoreszenz) an einem Rasterelektronenmikroskop (Kapitel 6.2.1).

### 2.3.3. Berechnung der Dosisleistung aus den Nuklidgehalten

Liegen die Nuklidgehalte vor, kann aus diesen Daten die Dosisleistung errechnet werden. Die Zerfälle der Nuklide sind bekannt (Halbwertszeiten, Zerfallsarten, Energien). Ausgehend von der Vorstellung, dass die gesamte in einem unendlich ausgedehnten homogenen Material erzeugte Energie auch wieder absorbiert wird, lässt sich die absorbierte Energie pro Masse Material und Zeit (d.h. die

### 2.3. Bestimmung der Dosisleistung

Dosisleistung) errechnen. In der Praxis wird auf tabellierte Umrechnungsfaktoren zurückgegriffen (Tabelle 2.2). Ausgehend von den Nuklidgehalten erhält man mit diesen Faktoren für jedes Nuklid bzw. jede gesamte Zerfallsreihe die Dosisleistung getrennt nach Strahlungsarten. Diese Trennung ist notwendig, da die verschiedenen Strahlungsarten z.B. unterschiedlich stark durch Porenwasser absorbiert werden.

Einen wichtigen Einfluss bei der Berechnung der Dosisleistung besitzt die Reichweite der verschiedenen Strahlungsarten. Im Sediment wird von folgenden Reichweiten ausgegangen (Aitken, 1998):

- $\alpha$ -Teilchen: etwa 30  $\mu\text{m}$
- $\beta$ -Teilchen: etwa 3 mm
- $\gamma$ -Strahlung: etwa 30 cm

Liegt die Korngröße des bei der Datierung verwendeten Materials deutlich unterhalb dieser Reichweiten, wird das Material von allen Strahlungsarten durchdrungen. Je größer die Korngrößen werden, desto stärker kommt es zu Dosisleistungsgradienten in den Proben, bis hin zum partiellen Eindringen bestimmter Strahlungsarten in das Mineralkorn. Unter Berücksichtigung der Reichweite der  $\alpha$ -Teilchen wurden deshalb zwei Klassen von Datierungsverfahren entwickelt: die Grobkorndatierung sowie die Feinkorndatierung.

#### Die Feinkorndatierung

Bei der Feinkorndatierung (Zimmerman, 1967) wird aus der Probe der Korngrößenbereich von 4-11  $\mu\text{m}$  abgetrennt. Dieses Material wird von allen drei Strahlungsarten vollständig durchdrungen. Somit müssen bei der Dosisleistungsbeurteilung auch alle Strahlungsarten berücksichtigt werden. Eine besondere Stellung nimmt die  $\alpha$ -Strahlung ein. Das Signal, das durch  $\alpha$ -Strahlung in der Probe induziert wird, ist um einen Faktor in der Größenordnung von 10 schwächer als das Signal, das durch eine gleich hohe Dosis an  $\beta$ - oder  $\gamma$ -Strahlung erzeugt wird (Zimmerman, 1967). Erklärt wird dies durch die hohe Ionisationsdichte entlang der Spur des  $\alpha$ -Teilchens und die damit verbundenen Sättigungseffekte. Berücksichtigt wird dieses Verhalten durch den sogenannten a-Wert, der experimentell bestimmt wird (Aitken und Bowman, 1975).

Aus den Nuklidgehalten  $G_j$  erhält man mit folgender Gleichung, sowie unter Verwendung der Faktoren  $f_{i,j}$  aus Tabelle 2.2 die Dosisleistung  $\dot{D}_{i,j}^t$  für trockenes Material:

$$\dot{D}_{i,j}^t = G_j \cdot f_{i,j} \quad (2.3)$$

Wobei  $i = \alpha, \beta, \gamma$  und  $j = \text{Thorium, Uran, Kalium}$ . Da die Bestimmungen der Dosisleistungen an trockenem Material erfolgen, müssen diese Dosisleistungen noch auf den Wassergehalt korrigiert werden. Man bestimmt zunächst den Feuchtegehalt  $\Delta$  aus dem Trockengewicht  $T$  und dem Wassergehalt  $W$  der Probe:

## 2. Grundlagen der Lumineszenzdatierung

Tabelle 2.2.: **Umrechnungsfaktoren.** Mit den folgenden Faktoren lassen sich die Nuklidgehalte (in ppm für Uran und Thorium, in % für Kalium) direkt in Dosisleistung (in  $\text{Gy ka}^{-1}$ ) umrechnen (Adamiec und Aitken, 1998). Für Kalium und Rubidium wird ein festes Verhältnis von 200:1 angenommen (Warren, 1978).

Nuklid	$\alpha$ -Beitrag	$\beta$ -Beitrag	$\gamma$ -Beitrag
natürliches Uran	2,78	0,146	0,113
$^{232}\text{Th}$	0,732	0,0273	0,0476
$^{40}\text{K}$ (inkl. $^{87}\text{Rb}$ )	-	0,801	0,243

$$\Delta = \frac{T + W}{T} \quad (2.4)$$

Mit diesem Feuchtegehalt lassen sich die Dosisleistungen für trockenes Material korrigieren. Durch die unterschiedlichen Faktoren wird das für die verschiedenen Strahlungsarten unterschiedlich Absorptionsverhalten berücksichtigt (Zimmerman, 1971):

$$\dot{D}_\alpha = \frac{\dot{D}_\alpha^t}{1 + 1,5(\Delta - 1)} \quad (2.5)$$

$$\dot{D}_\beta = \frac{\dot{D}_\beta^t}{1 + 1,25(\Delta - 1)} \quad (2.6)$$

$$\dot{D}_\gamma = \frac{\dot{D}_\gamma^t}{1 + 1,14(\Delta - 1)} \quad (2.7)$$

Mit diesen korrigierten Dosisleistungen und dem oben eingeführten a-Wert  $a$  sowie der nach geographischer Lage und Überdeckung der Probe berechneten kosmischen Dosisleistung  $\dot{D}_k$  lässt sich nun die effektive Dosisleistung  $\dot{D}_{\text{eff}}$  berechnen:

$$\dot{D}_{\text{eff}} = a \cdot \dot{D}_\alpha + \dot{D}_\beta + \dot{D}_\gamma + \dot{D}_k \quad (2.8)$$

### Die Grobkorndatierung

Bei den Grobkornmethoden kommen Korngrößen in der Größenordnung um  $100 \mu\text{m}$  zum Einsatz. Bei der Quarzeinschlusstechnik (Flemming, 1966) handelt es sich um reine Quarzkörner, die keine interne Radioaktivität besitzen. Diese Technik wurde zur eigentlichen Grobkornmethode (Mejdahl und Winther-Nielsen, 1982) weiterentwickelt, die auch Materialien mit interner Radioaktivität berücksichtigt. Bei beiden Methoden wird die äußere Rinde der Mineralkörner, die durch die  $\alpha$ -Strahlung beeinflusst wird, durch Ätzen mit Flusssäure entfernt. Im praktischen Einsatz hat sich jedoch gezeigt, dass bei Feldspatkörnern die Ätzung zu einer Spaltung der Körner und nicht zu einem gleichmäßigen Abätzen der äußeren Rinde führt. Deshalb wird in dieser Arbeit auf das Ätzen

### 2.3. Bestimmung der Dosisleistung

der Feldspäte verzichtet und eine Abschätzung für den Einfluß der  $\alpha$ -Strahlung eingerechnet (Lang et al., 1996).

Für die in dieser Arbeit verwendeten Proben sind zusätzlich zur Formel 2.8 drei Faktoren zu berücksichtigen:

1. **Interne Dosisleistung.** Durch den Kaliumgehalt der Feldspäte kommt es zu einer internen Dosisleistung  $\dot{D}_{\text{int}}$  bedingt durch die  $\beta$ -Strahlung des  $^{40}\text{K}$ . Diese berechnet sich zu:

$$\dot{D}_{\beta,\text{int}} = f_{\beta,\text{K}} \cdot G_{\text{K,int}} \quad (2.9)$$

- Der Faktor  $f_{\beta,\text{K}}$  bezieht sich hier ausschließlich auf den  $\beta$ -Anteil des  $^{40}\text{K}$  (ohne  $^{87}\text{Rb}$  wie in Tabelle 2.2). Deshalb gilt hier  $f_{\beta,\text{K}} = 0,782$ .
- $G_{\text{K,int}}$  gibt den internen Kaliumgehalt (in %) an, nicht zu verwechseln mit dem Kaliumgehalt des umgebenden Sediments in Formel 2.3.

2. **Beitrag der  $\alpha$ -Strahlung.** Bei Grobkornpräparaten beeinflusst die  $\alpha$ -Strahlung des umgebenden Sediments nur die äußere Rinde der Körner. Lang et al. (1996) empfehlen daher die Abschätzung des Einflusses durch einen Volumenvergleich. Dabei wird der Anteil des Volumens des Kornes berechnet, der durch  $\alpha$ -Strahlung bestrahlt wird. Mit diesem Faktor  $p_\alpha$  wird die  $\alpha$ -Dosisleistung korrigiert.

$$p_\alpha = \frac{d^3 - (d - 2i_\alpha)^3}{d^3} \quad (2.10)$$

wobei  $d$  der Durchmesser des Kornes und  $i_\alpha$  die Eindringtiefe der  $\alpha$ -Strahlung ist. Da bei der Grobkorndatierung in der Regel keine Bestimmung des  $a$ -Wertes erfolgt, empfehlen Lang et al. (1996) die Annahme eines  $a$ -Wertes von  $a = 0,1 \pm 0,05$ . Für die Eindringtiefe empfehlen die Autoren die Verwendung von  $i_\alpha = 10 \pm 5 \mu\text{m}$ . Den abgeschätzten Beitrag der  $\alpha$ -Dosisleistung erhält man somit nach:

$$\dot{D}_\alpha = p_\alpha \cdot \dot{D}_{\alpha,\text{ext}} \quad (2.11)$$

3. **Reichweite der  $\beta$ -Strahlung.** Hier sind zwei Effekte zu beachten. Zum einen wird die externe  $\beta$ -Strahlung bei den verwendeten Korndurchmessern bereits merklich geschwächt, zum anderen wird die interne  $\beta$ -Strahlung des Mineralkornes nicht vollständig im Korn absorbiert. Beiden Effekten trägt folgende Formel Rechnung:

$$\dot{D}_\beta = \phi_1(d)\dot{D}_{\beta,\text{int}} + (1 - \phi_2(d))\dot{D}_{\beta,\text{ext}} \quad (2.12)$$

Hierbei ist  $\phi(d)$  der Abschwächungsfaktor, der wiederum von der Energie der Elektronen (deshalb die unterschiedlichen Indizes für interne ( $\phi_1$ ) und externe ( $\phi_2$ ) Strahlung - die interne Strahlung ist nur durch  $^{40}\text{K}$  bedingt, die externe wird aus mehreren Quellen unterschiedlicher Zerfallsenergien

## 2. Grundlagen der Lumineszenzdatierung

gespeist) sowie von der Geometrie der Mineralkörner abhängt. Für sphärische Körner unterschiedlichen Durchmessers wurden die Faktoren für die relevanten Nuklide und Zerfallsreihen von Mejdahl (1979) berechnet. In Gleichung 2.12 geht  $\dot{D}_{\beta,\text{int}}$  aus Gleichung 2.9 sowie  $\dot{D}_{\beta,\text{ext}}$  aus Gleichung 2.6 ein.

Die effektive Dosisleistung  $\dot{D}_{\text{eff}}$  der Feldspat-Grobkorndatierung ergibt sich somit aus der Formel 2.8 unter der Verwendung der Formeln 2.11 und 2.12.



## 3. Messtechnik

Die derzeit erhältlichen Meßgeräte im Bereich Lumineszenzdosimetrie sind nicht für Radiolumineszenzmessungen ausgerüstet. Lediglich TL und OSL/IRSL Messungen werden durch die Geräte unterstützt. Ebenso wenig lassen sich diese Geräte auf einfache Weise für Radiolumineszenzmessungen umrüsten. Die einzige Möglichkeit war daher die Entwicklung und der Bau der notwendigen Meßgeräte im Rahmen dieser Arbeit. Aufgrund von Erfahrungen mit ersten Vorversuchen (Schilles, 1998) wurden folgende Geräte projektiert:

- **RL-Spektrometer.** Das an der Forschungsstelle Archäometrie vorhandene Lumineszenz-Spektrometer (Rieser et al., 1999) sollte um eine RL-Einheit erweitert werden. Um exakte Messungen durchführen zu können, musste das Spektrometer, das sich in einem experimentellen Stadium befunden hat, erweitert und insbesondere möglichst exakt kalibriert werden.
- **RL-Messkammer.** Zu Beginn dieser Arbeit waren ausschließlich RL Messungen mittels eines Spektrometers veröffentlicht. Um exaktere Messungen durchführen und Datierungsmessungen sinnvoll ausführen zu können, war deshalb die Entwicklung eines Messgerätes basierend auf einem Detektor zur Einzelphotonenzählung (Photomultiplier) dringend notwendig.
- **Röntgen-Messgerät.** Als langfristige Perspektive sollte ein Gerät zur Stimulation der RL mittels Röntgenstrahlung entwickelt werden. Die Vorteile liegen hierbei unter anderem in der variablen Dosisleistung, der Möglichkeit von RL Messungen bei erhöhter Temperatur und der Möglichkeit der schnellen An- und Abschaltung der Stimulation.

### 3.1. Spektrale Messungen der Radiolumineszenz

#### 3.1.1. Aufbau des Spektrometers

An der Forschungsstelle Archäometrie wurde im Rahmen einer früheren Arbeit ein Lumineszenzspektrometer aufgebaut (Rieser et al., 1999). Das Lumineszenz-Spektrometer war bisher für Messungen von TL- und IRSL-Spektren ausgelegt. Es befand sich noch in einem experimentellen Aufbau, insbesondere die Ablaufsteuerung musste manuell durchgeführt werden und war deshalb ungenau.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde das Gerät zum einen um eine RL-Einheit erweitert und zum anderen wurde die Steuerungselektronik ausgebaut, um reproduzierbare Messabläufe zu erlauben. Schließlich wurde ein neues Kalibrationsprotokoll für das Gerät entwickelt und die zugehörige Software zur Auswertung der Daten neu erstellt.

### 3. Messtechnik

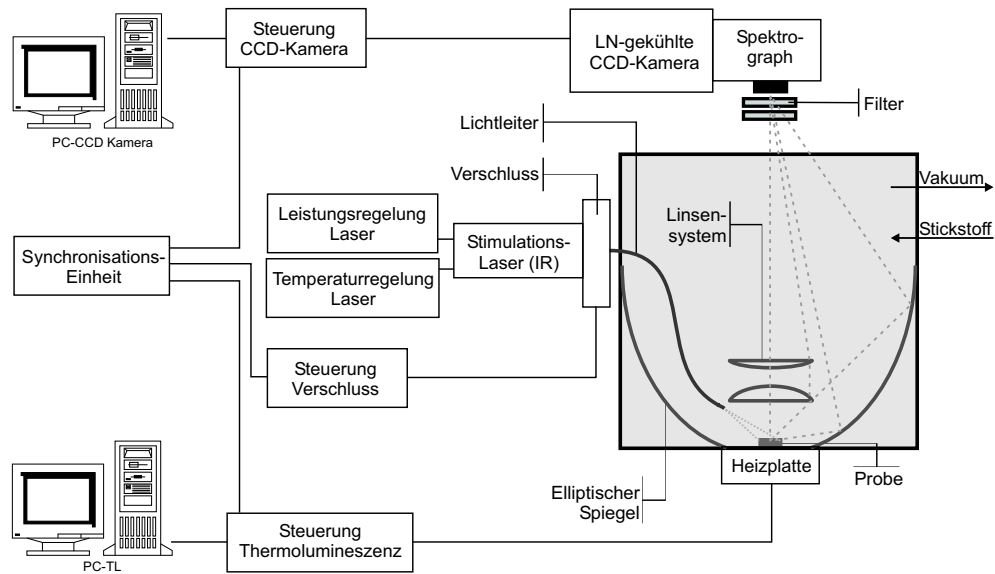


Abbildung 3.1.: **Lumineszenz-Spektrometer.** Das Lumineszenz-Spektrometer für TL und IRSL Messungen. Für RL Messungen kann die Quelle des RL-Messgerätes oberhalb der Heizplatte eingesetzt werden.

Abbildung 3.1 gibt einen Überblick über den Aufbau des Gerätes. Die neu entwickelte und aufgebaute Synchronisationseinheit übernimmt die Koordination der Messabläufe, d.h. die Aufzeichnung der Spektren erfolgt nun synchron zur thermischen oder optischen Stimulation.

Das Spektrometer besteht aus einer Messkammer, die die Probe aufnimmt und durch optische Elemente (elliptischer Spiegel und Linsengruppe) für eine Fokussierung der Lumineszenzemissionen auf den Eintrittsspalt des Czerny-Turner (flat field) Gitterspektrographen (Acton SP 150) sorgt. Für alle Messungen wurde mit einem Gitter mit  $150 \text{ Furchen mm}^{-1}$  und einer Blaze-Wellenlänge von  $300 \text{ nm}$  gearbeitet. Als Detektor dient eine CCD-Kamera (Princeton Instruments), deren Chip mit flüssigem Stickstoff und einer Temperatursteuerung auf ca.  $-100 \text{ }^{\circ}\text{C}$  gekühlt wird. Der Chip besitzt eine Größe von  $1100 \times 330 \text{ Pixel}$ .

Das Spektrometer ist mit einer Heizplatte zur Messung von TL-Spektren ausgestattet. Diese erlaubt eine Regelung der Heizrate im Bereich von unter  $1 \text{ K s}^{-1}$  bis über  $10 \text{ K s}^{-1}$ . Ein Thermoelement an der Heizplatte ermöglicht eine Temperaturkontrolle während der Messung. Für TL-Messungen kann die Messkammer evakuiert und mit hoch reinem Stickstoff geflutet werden, um mögliche Oxidationsprozesse zu verhindern.

Zur Messung von IRSL-Spektren wird ein IR-Diodenlaser (Profile) eingesetzt. Die Emissionswellenlänge des Lasers liegt bei  $845 \text{ nm}$  bei einer Leistung von  $100 \text{ mW}$ . Der Laser besitzt eine Leistungs- und eine Temperaturregelung und ist über einen Lichtleiter mit Verschluss in die Messkammer des Spektrometers eingekoppelt. Da die meisten IR-Diodenlaser eine sehr schwache Nebenemission im blauen Spektralbereich besitzen, die bei Lumineszenzmessungen stört, ist es

### 3.1. Spektrale Messungen der Radiolumineszenz

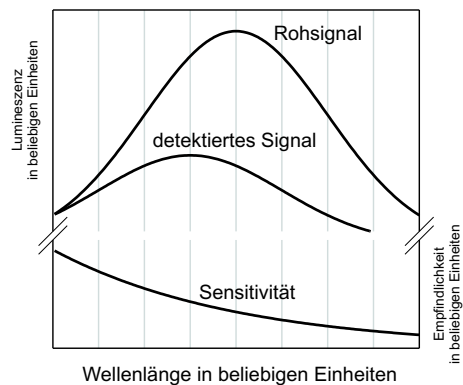


Abbildung 3.2.: **Spektrale Verschiebung in der Lumineszenzspektroskopie.** Durch eine steile Sensitivitätskurve kann es zur Verschiebung von breiten Emissionspeaks kommen (Das detektierte Signal erhält man durch Multiplikation des Rohsignals mit der Sensitivitätskurve). Bei Linienspektren besteht dieses Problem nicht, hier ändert sich nur die relative Signalthöhe durch die Sensitivitätskurve.

nötig, diese Emission durch einen Hochpass-Kantenfilter (z.B. R 62, Hoya) zu unterdrücken.

Die RL-Stimulationseinheit besteht aus einem Aufsatzring, der oberhalb der Heizplatte in die Messkammer integriert werden kann. Dieser Ring besitzt eine Aufnahme für die  $^{137}\text{Cs}$ -Quelle, die auch im RL-Messgerät (Kap. 3.2) eingesetzt wird. Diese Anordnung erlaubt daher nur Messungen der RL bei Raumtemperatur.

Je nach Art der Messung werden vor dem Eintrittsspalt des Spektrographen optische Filter eingesetzt. Bei der IRSL dienen diese zur Abtrennung des IR-Stimulationslichtes, da durch die intensive Laserstrahlung der Detektor ohne Schutz gesättigt werden würde. Bei IRSL Messungen kommt der Filter BG 39 (Schott) in 3 mm Dicke zum Einsatz. Bei TL Messungen werden Filter zur Unterdrückung der thermischen Strahlung verwendet. Je höher die Temperatur der Heizplatte, desto stärker dringt die Planck'sche Wärmestrahlung zu höheren Energien und damit auch immer stärker in den Detektionsbereich des Spektrometers vor. Deshalb wird bei TL-Messungen, die in einen höheren Temperaturbereich (etwa oberhalb 300 °C) reichen, mit einem Wärmeschutzfilter, meist einem HA 3 (Chance Pilkington) oder KG 5 (Schott) Farbglasfilter, gearbeitet (Dicke jeweils 3 mm).

#### 3.1.2. Kalibration des Spektrometers

Die Beschreibung des Spektrometers im vorhergehenden Abschnitt macht deutlich, wie viele unterschiedliche optische Komponenten an der Detektion des Signals beteiligt sind. Da diese Elemente jeweils ein anderes Verhalten gegenüber Licht unterschiedlicher Wellenlänge zeigen, müssen die Eigenschaften dieser Elemente bei der Auswertung und Interpretation der Messergebnisse berücksichtigt werden (Abb. 3.2).

### 3. Messtechnik

Es ist sehr schwierig, aus den Datenblättern der einzelnen Komponenten (etwa Transmissionskurven von Filtern und Linsen, Reflektionskurven der Spiegel oder spektrale Empfindlichkeitskurven des Detektors) rechnerisch zu einer spektralen Empfindlichkeitskurve des Gesamtsystems zu gelangen. Die Schwierigkeit besteht dabei unter anderem in der Abschätzung der Anteile des Lumineszenzlichtes, die über den elliptischen Spiegel oder die Linsengruppe zum Detektor gelangen, zumal es sich bei der Probe um ein ausgedehntes Objekt von mehreren Millimetern Durchmesser handelt. Somit bleibt als Alternative zur Berechnung die Messung der Empfindlichkeitskurve des Spektrometers.

#### Wellenlängenkalibration und Binning

Zunächst muss eine Wellenlängenkalibration des Spektrometers durchgeführt werden. Dies bedeutet, dass den einzelnen Pixeln der CCD-Kamera jeweils eine Wellenlänge zugeordnet wird. Der CCD-Chip bildet eine 2-dimensionale Pixelmatrix mit 330x1100 Pixeln. Der Spektrograph liefert jedoch eine quasi-eindimensionale Information, d.h. er liefert ein spektral aufgelöstes Abbild des Eintrittsspalt (die Höhe des Eintrittsspalt liefert jedoch keine weitere Information sondern nur eine Erhöhung der Intensität). Aus diesem Grund können jeweils ganze Reihen von Pixeln (hier 330 Pixel), die jeweils alle einer Wellenlänge zugehören, zusammengefasst werden. Dieser Vorgang wird bei CCD-Kameras Binning genannt. Die Zusammenfassung solcher Reihen von Pixeln erfolgt nicht durch einfache Addition der Einzelwerte nach der Messung sondern wird schon vor der Messung durch die Steuerungselektronik durchgeführt. Dies hat zwei Vorteile. Zum einen fällt das Ausleserauschen, das den dominierenden Teil des Signaluntergrundes darstellt, bei CCD-Chips einmal pro ausgelesenem Element an, wobei es sich hierbei um einen einzelnen Pixel oder eine zusammengefasste Gruppe von Pixeln handeln kann. Durch das Binning wird so das Signal-Rausch-Verhältnis drastisch verbessert. Zum anderen wird eine deutliche Erhöhung der Auslesegeschwindigkeit erreicht.

Um nun den einzelnen Pixelreihen eine Wellenlängeninformation zuzuordnen zu können, benötigt man Lichtquellen mit scharf definierten Wellenlängen, im Idealfall mit einem Linienspektrum. Bislang wurde diese Kalibration mittels einer gewöhnlichen Glühlampe in Verbindung mit Interferenzfiltern durchgeführt (Rieser, 1999). Da jedoch die verwendeten Interferenzfilter eine nicht zu vernachlässigende Linienbreite besitzen, wurde im Rahmen dieser Arbeit eine neue Kalibrationsprozedur eingeführt, bei der als Lichtquelle eine spezielle Hg(Ar)-Kalibrationslampe (L.O.T.-Oriel) verwendet wurde. Diese besitzt ein Quecksilber-Linienspektrum. Durch Tests mit mehreren Linien dieser Lampe wurde ermittelt, dass die Beziehung zwischen Wellenlänge und Pixelnummer für den verwendeten Spektrographen linear ist, d.h. für die routinemässig durchzuführenden Kalibrationen genügt die Verwendung von zwei Spektrallinien, die jedoch nicht zu eng benachbart sein sollten. Üblicherweise werden die Linien bei 253,65 nm und 546,07 nm zur Kalibration herangezogen. Die Kalibration erfolgt bei minimaler Öffnung des Eingangsspalt, um eine möglichst geringe Linienbreite (hohes Auflösungsvermögen) am Detektor und somit eine möglichst hohe Genauigkeit zu erreichen.

### 3.1. Spektrale Messungen der Radiolumineszenz

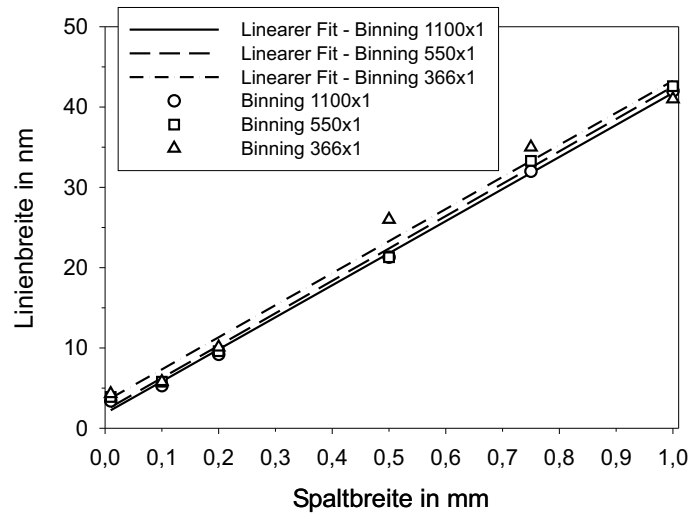


Abbildung 3.3.: **Auflösungsvermögen des Spektrometers.** Das Auslösungsvermögen in Abhängigkeit von der Spaltbreite für unterschiedliche Binning-Varianten. Die Bezeichnung 550x1 bedeutet, dass es 550x1 auszulesende Elemente auf dem Chip gibt, d.h. in diesem Fall sind jeweils 330 Pixelreihen und 2 Pixelspalten zu einem Element zusammengefasst

Bei Lumineszenzmessungen hingegen ist nicht das Auflösungsvermögen der limitierende Faktor (die Lumineszenzemissionen besitzen Halbwertsbreiten in der Größenordnung von 100 nm) sondern die Intensität. Um möglichst hohe Signale bei geringem Untergrund zu erhalten, wurden die Spalten des Chips bereits zu einem Element zusammengefasst (Binning). Bei dem verwendeten Gitter wird etwa der Wellenlängenbereich von 200-1200 nm auf dem Chip abgebildet. Bei einer Spaltenanzahl von 1100 Pixeln entspricht das grob einem Wert von 1 nm pro Pixel. Da für die Lumineszenzspektrometrie ein Wert in der Größenordnung von 10 nm pro Pixel ausreicht, besteht hier wiederum die Möglichkeit, durch Zusammenfassung (Binning) von mehreren Spalten eine weitere Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses herbeizuführen. Deshalb werden in der Regel 2-4 Spalten zu einem Element zusammengefasst (insgesamt also z.B. 4 x 300 Pixel, ergibt 1200 Pixel pro Element). Um zu demonstrieren, dass dadurch keine Einschränkungen im Auflösungsvermögen erzeugt werden, wurde mit der Hg(Ar)-Lampe das Auflösungsvermögen für verschiedene Binning-Varianten vermessen. In Abbildung 3.3 ist die Linienbreite der Spektrallinien gegen die Spaltbreite des Eingangsspaltes jeweils für drei unterschiedliche Binning-Varianten aufgetragen. Es zeigt sich, dass die Linienbreite nahezu unabhängig von der Art des Binning bleibt und nur durch die Breite des Eingangsspaltes bestimmt wird. Bei einer typischerweise bei Messungen benutzten Spaltbreite von 0,5 mm beträgt das Auflösungsvermögen 20 nm.

#### Korrektur der spektralen Sensitivität des Spektrometers

Eine weitaus größere Schwierigkeit stellt die Bestimmung der Sensitivitätskurve dar. Für die Messung dieser Kurve wird eine Lichtquelle mit bekanntem Spektrum benötigt, wobei dieses Spektrum einen möglichst glatten Verlauf im maßgeblichen Bereich von 200-1000 nm aufweisen sollte. Das Spektrum dieser Lampe kann dann gemessen werden, um anschließend das gemessene mit dem bekannten Spektrum zu vergleichen. Der Quotient aus beiden Kurve ergibt die spektrale Sensitivitätskurve des Spektrometers.

Geeignet für solche Messungen sind Halogenlampen, da sie ein glattes Spektrum besitzen. Gasentladungslampen besitzen ein sehr zerklüftetes Spektrum, das eher einem Linienspektrum gleicht. Der Nachteil von Halogenlampen ist, dass das Spektrum erst bei etwa 300 nm beginnt. Dennoch wurde als bester Kompromiss eine kalibrierte Halogenlampe (L.O.T.-Oriol) verwendet. Vom Hersteller wird für diese Lampen ein Kalibrierungsbericht (abgeleitet von NIST-Standards) mitgeliefert (Abb. 3.5). Das Spektrum dieser Lampe wurde mit dem Spektrometer jeweils für die verschiedenen Detektionsfilter aufgenommen. Durch Division des gemessenen Spektrums durch das Emissionsspektrum ergibt sich die, für die jeweilig verwendeten Filter unterschiedliche, Sensitivitätskurve des Spektrometers. Die inverse Kurve zu dieser Sensitivitätskurve ergibt die Korrekturkurve, mit der die gemessenen Spektren korrigiert (d.h. multipliziert) werden müssen. Da unterhalb von 300 nm die Intensität der verwendeten Lampe so gering ist, dass keine sinnvollen Ergebnisse mehr erzeugt werden konnten, wurde im Bereich unterhalb 300 nm eine Abschätzung der Sensitivität auf Basis der Daten der verwendeten Komponenten errechnet. Um die Messdaten später einfacher einer Korrektur unterziehen zu können, wurden Funktionen an die Korrekturkurven angepasst, um somit den Korrekturfaktor für beliebige Wellenlängen errechnen zu können. Die gemessenen Sensitivitätskurven, die daraus errechneten Korrekturkurven und die daran angepassten Funktionen sind für die verschiedenen Filter in Anhang C dargestellt.

#### Prüfung der Kalibration - insbesondere im IR-Bereich

Die Kalibration wurde mit einem Satz von vier Interferenz-Bandpassfiltern, deren zentrale Wellenlängen über den gesamten relevanten Spektralbereich verteilt liegen, geprüft. Die Filter wurden dabei mit einer Halogenlampe beleuchtet. Das transmittierte Licht wurde mit dem Spektrometer gemessen, die Spektren anschließend der Standardauswertung (Anhang C) unterzogen. Das Ergebnis ist in Abbildung 3.4 und Tabelle 3.1 dargestellt. Die Messungen bestätigen die Kalibration des Spektrometers über den gesamten Spektralbereich.

Besonderes Interesse bestand an der Untersuchung der Emissionen des Feldspates im infraroten Spektralbereich, genauer im Bereich 800-1000 nm. Da die Empfindlichkeit des Spektrometers in diesem Bereich ein steil abfallendes Verhalten aufweist, sollte die Kalibration in nahen IR-Bereich nochmals gesondert überprüft werden.

Zu diesem Zweck wurde ein spezieller Interferenz-Bandpass-Filter angeschafft (850FS100, Fa. LOT-Oriol). Der Filter besitzt einen maximalen Durchlass bei

### 3.1. Spektrale Messungen der Radiolumineszenz

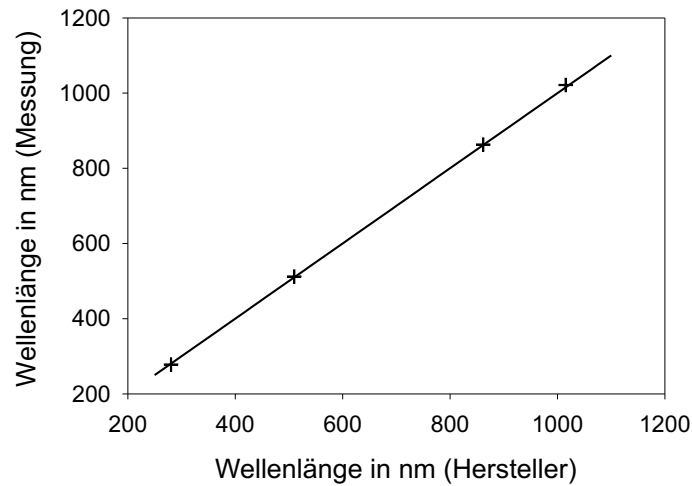


Abbildung 3.4.: **Test der Kalibration des Spektrometers.** Als Test der Kalibration wurden vier Interferenzfilter mit bekannter Transmission gemessen. Die Kreuze geben die Messpunkte an, die durchgezogene Linie repräsentiert die 1:1 Gerade.

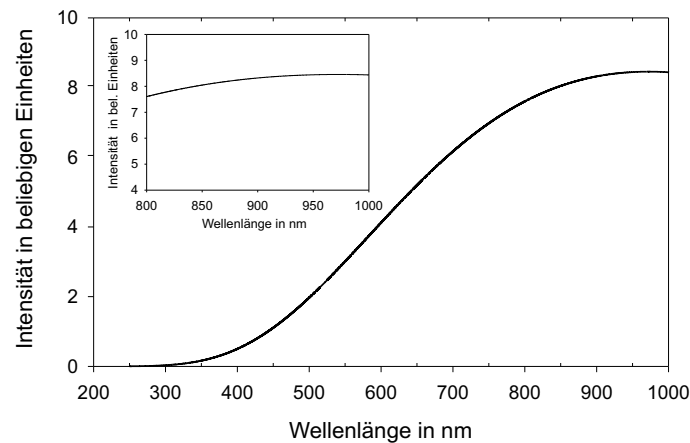


Abbildung 3.5.: **Spektrum der Halogenlampe.** Spektrum der kalibrierten Halogenlampe. Im kleinen Diagramm befindet sich der Ausschnitt von 800 bis 1000 nm, der für den Test der IR Kalibration als konstant angesehen wird.

### 3. Messtechnik

Tabelle 3.1.: **Test der Kalibration des Spektrometers.** Vergleich der gemessenen und vom Hersteller bestimmten Filterdaten.

Wellenlänge in nm			
Hersteller	Messung	Differenz in nm	rel. Differenz in %
280,6	278	2,6	< 1
510	512	2	< 0,5
861,771	863	1,229	< 0,2
1015,3	1020,6	5,3	< 1

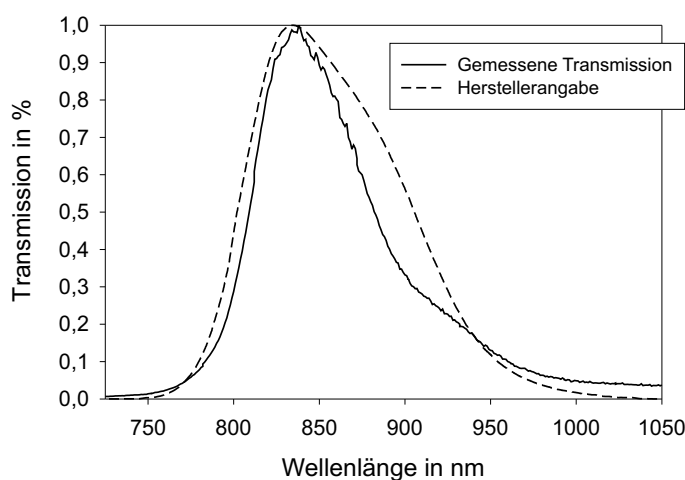


Abbildung 3.6.: **Test der Kalibration.** Dargestellt ist die vom Hersteller gemessene Transmissionskurve des IR-Bandpassfilters sowie die mit dem Spektrometer gemessene Transmission.

850 nm mit einer Halbwertsbreite von ca. 100 nm. Vom Hersteller wurde für den Filter ein Einzelmessprotokoll für die Transmission mitgeliefert. Der Filter wurde in Probenposition montiert und mit einer Halogenlampe (LOT-Oriel) beleuchtet. Vom Licht, das den Filter passieren konnte, wurde ein Spektrum aufgenommen. Diese Messdaten wurden der Routineauswertung mit dem Programm LumSpec 2.2 unterzogen. Das Spektrum der Halogenlampe wurde im Messbereich von 800-1000 nm als konstant angenommen (vgl. Abb. 3.5). Schließlich wurde das so gemessene Spektrum mit der vom Hersteller gelieferten Kurve verglichen. Beide Kurven sind in Abbildung 3.6 dargestellt (beide Kurven auf das Peakmaximum normiert). Insbesondere die Lage der Peakmaxima stimmen sehr gut überein, womit die Tauglichkeit der Kalibration des Spektrometers im nahen IR-Bereich unterstrichen wird.

#### 3.1.3. Darstellung von RL-Spektren von Feldspäten

Ein typisches Radiolumineszenzspektrum ist in Abb. 3.7 dargestellt. An die Messdaten wurden 5 Gauß-Kurven angepasst, um so die einzelnen Emissionen



### 3.2. Radiolumineszenz-Messgerät mit Einzelphotonenzählung

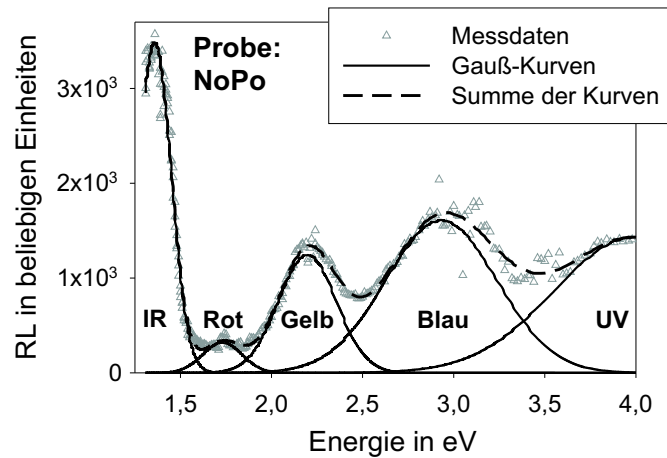


Abbildung 3.7.: **RL Spektrum der Probe NoPo.** Die Abbildung zeigt das RL Spektrum der Feldspat-Probe NoPo (K-reicher Feldspat, nähere Angaben siehe Anhang A.2 und Tabelle A.1). An die Messdaten wurden 5 Gauß-Kurven angepasst. Die Summe der fünf Gauß-Kurven zeigt eine gute Übereinstimmung mit den Messdaten. Die Farbangaben entsprechen den in dieser Arbeit verwendeten Bezeichnungen. (Messparameter: Integrationszeit 150 s bei einer Spaltbreite von 1,0 mm, Messung ohne Filter, Binning: 366x1)

zu trennen. Zum Test der Güte der Anpassung ist im Schaubild die Summe der 5 Kurven dargestellt, die eine sehr gute Übereinstimmung mit den Messdaten zeigt. Eine ausführlichere Darstellung der Ergebnisse der spektralen Messungen, insbesondere auch der Lage der Emissionen für verschiedene Proben erfolgt in Kapitel 5.1.3.

Eine zentrale Frage wird schon durch Abb. 3.7 aufgeworfen. Durch die Breite der einzelnen Emissionen kommt es teilweise zu großen Bereichen, in denen sich zwei Emissionen überlagern. Dies führt zu einem Problem bei Messgeräten, die keinen Detektor mit spektraler Auflösung verwenden, wie etwa einen Photomultiplier. Bei diesen Geräten erfolgt die Trennung der einzelnen Emissionen durch optische Filter. Die Wahl der Filter erfolgt daher nach Auswertung der spektralen Messungen. Ist eine vollständige Trennung der Emissionen aufgrund einer Überlappung nicht möglich, muss der Einfluss der eigentlich unerwünschten Emission auf das Messergebnis abgeschätzt und bewertet werden. Detaillierte Untersuchungen zu dieser Problematik finden sich in Kapitel 5.3.

## 3.2. Radiolumineszenz-Messgerät mit Einzelphotonenzählung

### 3.2.1. Aufbau des Messgerätes

Die Basis für das Radiolumineszenz-Messgerät bildet eine Lumineszenz-Messkammer, die zuvor für IRSL-Messungen verwendet wurde (Schilles, 1998). Die

Tabelle 3.2.:  $\beta$ -Zerfälle des  $^{137}\text{Cs}$ .

Max. Energie in eV	Mittlere Energie in eV	rel. Intensität in %
1176	416,26	5,6
892,1	300,57	$5,8 \cdot 10^{-4}$
514,03	174,32	94,4

Probe befindet sich bei diesem Gerät im Brennpunkt eines elliptischen Spiegels, der das emittierte Lumineszenzlicht in den zweiten Brennpunkt des Spiegels reflektiert. Dort sitzt ein ebener Spiegel, der das Licht umleitet, so dass es durch optische Filter auf die Photokathode eines Photomultipliers (PMT) gelangt. Die Umlenkung des Strahlengangs wurde trotz der entstehenden Verluste realisiert, um eine direkte Einstrahlung der Anregungsquelle auf den Photomultiplier und die damit verbundene Erhöhung des Rauschens zu verhindern.

Da die Anwendung insbesondere in der Detektion von IR-Emissionen liegen sollte, wurden die Komponenten der ursprünglichen Messkammer auf ihre Tauglichkeit im IR-Bereich überprüft und gegebenenfalls ausgetauscht. Der elliptische Spiegel musste weiterhin verwendet werden, da er nur in der Ausführung mit Nickel-Substrat und Rhodium-Beschichtung erhältlich ist. Der ebene Spiegel wurde durch einen Spiegel mit Silber-Beschichtung ersetzt, die einen höheren Reflektionsgrad im IR-Bereich als übliche Aluminiumspiegel aufweist. Die wichtigste neue Komponente ist jedoch der Photomultiplier. Die üblicherweise für Lumineszenzmessungen verwendeten PMT mit Bialkali-Photokathode besitzen eine spektrale Empfindlichkeit bis in den Bereich von etwa 700 nm. Das Messgerät wurde deshalb mit einem PMT mit GaAs(Cs)-Photokathode ausgestattet (R 943-02, Hamamatsu), die eine spektrale Empfindlichkeit bis zu 930 nm besitzt.

Die Radio-Stimulation erfolgt durch eine  $^{137}\text{Cs}$ -Quelle mit einer Aktivität von 3,7 MBq (15.1.99). Das  $^{137}\text{Cs}$  wurde in ein spezielles Titan-Gehäuse eingearbeitet, die Abdeckung des Cäsiums ist als 5  $\mu\text{m}$  Titanfolie ausgeführt (AEA Technology). Bei Quellen mit transparentem Kunststoffgehäuse wurden bei Testmessungen Lumineszenzemissionen aus der Quelle selbst festgestellt, weshalb eine lichtundurchlässige Titanversiegelung gewählt wurde. Die Quelle selbst dient als Probenhalter, so dass die Probe von unten durchstrahlt wird. Aus diesem Grund musste ein spezieller Probenträger neu entwickelt werden, da die üblicherweise verwendeten Stahl- oder Aluminiumscheibchen zu dick sind und damit zu einer zu starken Schwächung der Stimulation führen. Abbildung 3.8 gibt einen Gesamtüberblick über den Aufbau der RL-Messkammer.

### 3.2.2. Bestrahlungseinheit

#### Abschätzung des $\beta$ -Gradienten

In den von Trautmann veröffentlichten Arbeiten (Trautmann et al. (1998), Trautmann et al. (1999), Trautmann et al. (1999), Trautmann (1999), Traut-

### 3.2. Radiolumineszenz-Messgerät mit Einzelphotonenzählung

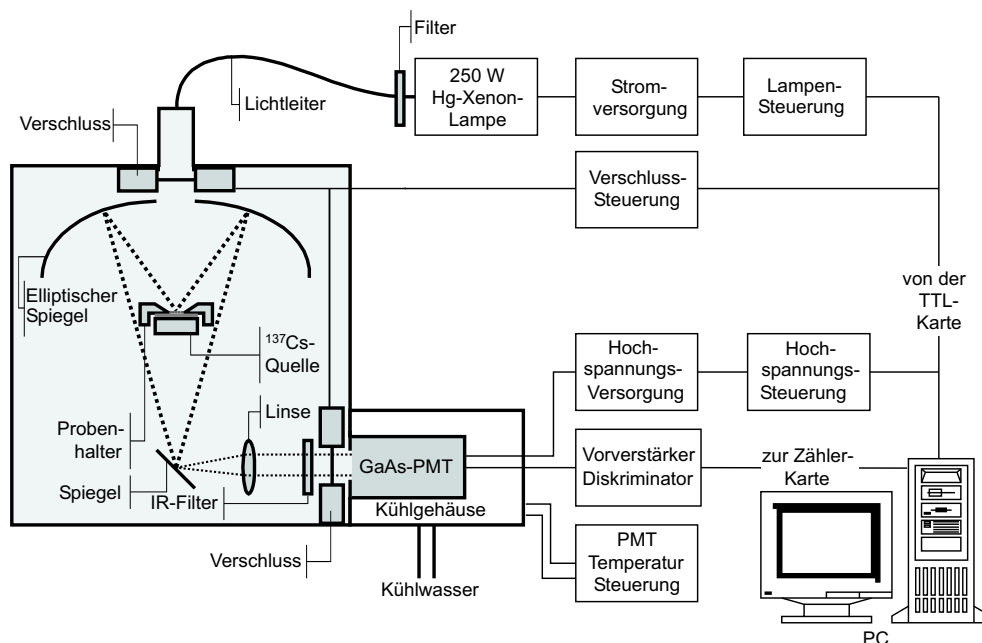


Abbildung 3.8.: **Das RL-Messgerät.** Das RL-Messgerät zur Einzelphotonenzählung mit integrierter Bleicheinrichtung.

mann et al. (2000)) wird auf eine  $^{137}\text{Cs}$ -Quelle ein Probenhalter gesetzt, in dem die Probe auf einer Aluminiumfolie liegt (Abb. 3.12 links). Die Körner liegen dabei lose und in mehreren Lagen ungeordnet im Halter (Trautmann, 1999). Bei einer Korngröße von etwa  $100\text{ }\mu\text{m}$  sind bei solch einer Anordnung schnell Probendicken von  $0,5\text{ mm}$  erreicht. Deshalb soll der  $\beta$ -Gradient abgeschätzt werden, der bei der Bestrahlung von Kalifeldspat auf der  $^{137}\text{Cs}$ -Quelle entsteht.

Beim Zerfall von  $^{137}\text{Cs}$  entsteht sowohl  $\gamma$ - als auch  $\beta$ -Strahlung. Der  $\beta$ -Zerfall findet zum  $^{137}\text{Ba}$  statt, dabei gibt es Zerfälle sowohl in den Grundzustand des Bariums als auch in zwei angeregte Zustände. Die Energien dieser Zerfälle und ihre relativen Intensitäten sind in Tabelle 3.2 aufgeführt (Tuli, 1997).

Kalifeldspat besitzt die chemische Formel  $\text{KAlSi}_3\text{O}_8$  (Anhang A). Als mittlere Dichte wurde der Wert  $\rho = 2,55\text{ g/cm}^3$  angenommen (Ramdohr und Strunz, 1978). Mit diesen Daten wurde mittels des Programms ESTAR (Berger et al., 1999) das Massen-Bremsvermögen  $\frac{S}{\rho}$  abhängig von der Energie berechnet. Die folgende Rechnung ist mit der maximalen Energie des Hauptzerfallsweges von  $514\text{ eV}$  durchgeführt. Bei der weiteren Abschätzung wurde von einem monoenergetischen Elektronenstrahl mit dieser Energie ausgegangen. Damit ergibt sich ein zu geringer Wert für die Abschwächung, da für die im Spektrum zusätzlich auftretenden Elektronen mit geringerer Energie das Massen-Bremsvermögen  $\frac{S}{\rho}$  und damit die Abschwächung höher sind. Das Programm ESTAR ergibt für  $514\text{ keV}$  einen Wert für  $\frac{S}{\rho}$  von

$$\frac{S}{\rho} = 1,67 \frac{\text{MeV cm}^2}{\text{g}} \quad (3.1)$$

### 3. Messtechnik

Tabelle 3.3.: **Schwächung der  $\beta$ -Strahlung in einer 100  $\mu\text{m}$  dicken Schicht Kalifeldspat.** Die Werte stellen Näherungen dar unter der Annahme eines konstanten Massen-Bremsvermögens in einem dünnen Absorber.

Energie in eV	Energieverlust in %
1176	3
416	11
514	8
174	36

Daraus errechnet sich das lineare Bremsvermögen  $S$  als:

$$S = \frac{dE}{dx} = \frac{S}{\rho} \rho = 1,67 \frac{\text{MeV cm}^2}{\text{g}} \cdot 2,55 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3} = 4,26 \frac{\text{MeV}}{\text{cm}} \quad (3.2)$$

Den Energieverlust in dünnen Absorbern kann man näherungsweise durch folgende Beziehung ermitteln (Knoll, 1989):

$$\Delta E = \left( -\frac{dE}{dx} \right)_{\text{mittel}} d \quad (3.3)$$

wobei  $d$  die Dicke des Absorbers darstellt. In unserem Fall gehen wir von einem mittleren Korndurchmesser von 100  $\mu\text{m}$  aus. Daraus errechnet sich für unser Modell ein Energieverlust von:

$$\Delta E = 43 \text{ keV} \quad (3.4)$$

Dies entspricht einem Verlust von rund 8 % beim Durchgang durch eine Kornlage. In Tabelle 3.3 sind die angenäherten Energieverluste in einer 100  $\mu\text{m}$  Kalifeldspat-Schicht für die maximalen sowie mittleren Energien der beiden Hauptzerfälle des Cäsiums angegeben. Aus diesen Daten ergibt sich für die oben erwähnte Probenanordnung ein beachtenswerter Gradient, der für Datierungsanwendungen nicht außer Acht gelassen werden darf. Es ist deshalb auf eine möglichst geringe Dicke der Probe zu achten. Es könnten auch Nuklide mit höheren  $\beta$ -Energien verwendet werden, dabei ist jedoch die schwierigere Handhabung zu beachten, so dass dieser Weg nur für vollautomatische Messgeräte empfohlen werden kann.

Zu berücksichtigen ist außerdem der Dosisaufbau innerhalb des Materials. In Abb. 3.9 ist dargestellt, wie die Elektronen, abhängig von der Distanz zwischen Probe und Quelle, auf die Probe treffen. Liegt die Quelle weit entfernt von der Probe, treffen die Elektronen nahezu senkrecht auf die Oberfläche. Erst in einiger Distanz von der Oberfläche sind die Richtungen der Elektronen isotrop verteilt. Im Gegensatz dazu treffen die Elektronen bei einer nahen Quelle schon nahezu isotrop verteilt auf die Probe. Im ersten Fall sind die Weglängen der Elektronen für eine bestimmte Schichtdicke nahe der Oberfläche der Probe kürzer als im zweiten Fall. Das bedeutet, dass im ersten Fall nahe der Oberfläche weniger Energie deponiert wird, als in einer gewissen Distanz von der Oberfläche.

### 3.2. Radiolumineszenz-Messgerät mit Einzelphotonenzählung

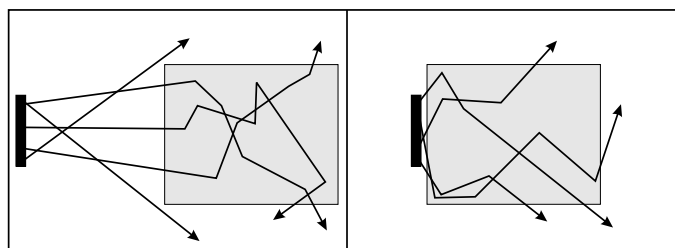


Abbildung 3.9.: **Dosisaufbau bei  $\beta$ -Strahlung.** Im linken Teil für eine weit entfernte Strahlungsquelle (nahezu paralleles Auftreffen der Elektronen). Im rechten Teil für eine nahe Strahlungsquelle.

#### Aufbau des Probenträgers

Aufgrund der Überlegungen in den vorhergehenden Abschnitten sollte der Probenträger folgende Bedingungen erfüllen:

- Das Probenmaterial soll eine Einkornlage auf dem Probenträger bilden.
- Der Träger soll die Strahlung aus der Cäsium-Quelle möglichst wenig abschwächen.
- Die Probe soll unmittelbar auf der Quelle liegen.

Diese Bedingungen führten zur Entwicklung eines Probenträgers, der aus einem Aluminiumring besteht, der über die Quelle gelegt werden kann. Dieser Ring trägt eine selbstklebende Kunststoffolie, deren klebende Seite nach oben zeigt und somit die Mineralkörner fixiert (Abb. 3.10 links). Die Bildung einer Einkornlage wurde für verschiedene Klebefolien unter dem Binokular getestet. Abhängig von der Dicke des Klebers kam es zur Bildung von Ein- oder Mehrkornlagen. Als ideale Folie erwies sich schließlich Bucheinbandfolie. Die Folie zeigte keine Radiolumineszenzemissionen. In einem weiteren Test erwies sich die Fixierung der Körner als äußerst haltbar. Dazu wurde ein belegter Träger fotografiert. Anschließend wurde der Träger mehrmals mit der belegten Seite nach unten auf einen Tisch geklopft und schließlich erneut fotografiert. Der Vergleich beider Bilder zeigt keine Veränderungen (Abb. 3.10 rechts).

#### 3.2.3. Kalibration der $^{137}\text{Cs}$ -Quelle

Bei den bisher veröffentlichten Datierungen mit IR-Radiolumineszenz (Trautmann (1999), Trautmann et al. (1999)) wurde die Quelle im wesentlichen dadurch kalibriert, dass eine Dosisleistung ausgewählt wurde, für die das Datierungsergebnis durch IR-RL die geringste Abweichung zu Ergebnissen anderer Methoden ausweist. Da aber anhand der so bestimmten Ergebnisse die Datierungsmethode selbst überprüft werden soll, ergibt sich ein Zirkelschluss.

Deshalb wurde im Rahmen dieser Arbeit eine unabhängige Kalibration der Quelle durchgeführt. Dabei wurde bewußt auf jeglichen Einsatz von Radiolumineszenz verzichtet. Statt dessen wurde lediglich Probenmaterial in der RL-

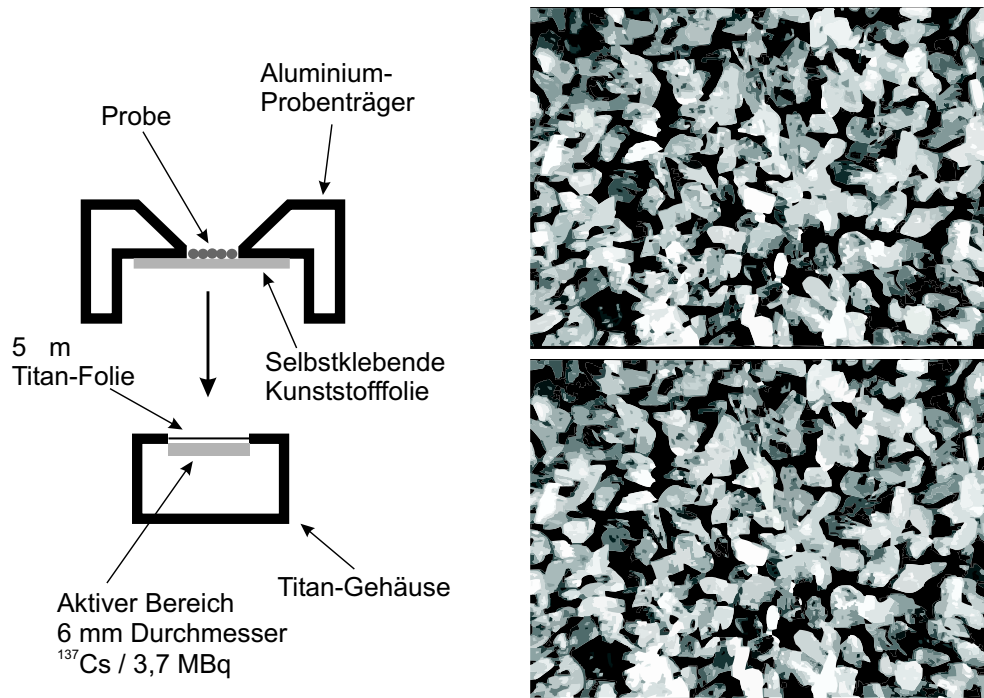


Abbildung 3.10.: **Probenträger (links)**. Skizze des Probenträgers für das RL-Messgerät. **Test der Trägerfolie (rechts)**. Die Abbildung zeigt eine Einkornlage auf der Trägerfolie. Das obere Bild zeigt den Probenträger vor, das untere nach dem Abklopfen (Erläuterung siehe Text). Abgesehen von Helligkeitsunterschieden durch unterschiedliche Beleuchtung sind keine verschobenen oder fehlenden Körner zu entdecken. Die Bilder wurden vektorisiert, um den Vergleich zu erleichtern.

Messkammer bestrahlt. Die Dosis, die das Material dabei erhalten hat, wurde anschließend mit externen Messgeräten bestimmt. Als Material kam dabei Quarz zum Einsatz, da für Quarz-Grobkorn im Moment die verlässlichsten Methoden zur Dosisbestimmung an einzelnen Teilproben existieren. Die Frage, die dabei aufgeworfen wird, ist die nach den Unterschieden in den Eigenschaften von Quarz und Feldspat. Es wurden deshalb mit ESTAR (Berger et al., 1999) die Massen-Bremsvermögen  $\frac{S}{\rho}$  abhängig von der Energie für beide Materialien berechnet. Die Ergebnisse sind in Tabelle 3.4 und Abbildung 3.11 dargestellt. Für die im Rahmen der Lumineszenzdatierung benötigte Genauigkeit der Kalibration sind die Abweichungen nicht relevant. Es kann deshalb die Kalibration mit Quarz durchgeführt werden, um die Ergebnisse anschließend für Feldspat-Datierungen zu nutzen.

Die Dosisbestimmung des bestrahlten Materials sollte mit dem SAR-Protokoll (Kapitel 2.2.4), in einer speziell in Heidelberg von Markus Fuchs adaptierten Form (Fuchs, 2001), durchgeführt werden. Diese Messungen können auf einem Risø-Lumineszenzmessgerät durchgeführt werden, wie es für Routinedatierungen eingesetzt wird. Das für die Messung verwendete Risø TL/OSL-DA 15 Mess-

### 3.2. Radiolumineszenz-Messgerät mit Einzelphotonenzählung

Tabelle 3.4.: **Abweichungen in den Massen-Bremsvermögen.** Vergleich der Massen-Bremsvermögen von Quarz und Kalifeldspat (Orthoklas) für verschiedene Energien (berechnet mit Berger et al. (1999)).

Energie in eV	$\frac{S}{\rho_{\text{Qua.}}}$ in $\frac{\text{MeV cm}}{\text{g}}$	$\frac{S}{\rho_{\text{Ort.}}}$ in $\frac{\text{MeV cm}}{\text{g}}$	Abweichung in %
10	17,81	17,42	- 2,2
50	5,39	5,29	-1.76
100	3,39	3,34	-1,65
500	1,71	1,68	-1,52

gerät erlaubt Messungen von TL, IRSL und blau stimulierter OSL und besitzt eingebaute  $\alpha$ - und  $\beta$ -Quellen. Das Gerät wird von Bøtter-Jensen (1997) ausführlich beschrieben. Vor der eigentlichen Kalibrierung der RL-Quelle war es nötig, die interne  $^{90}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Y}$ - $\beta$ -Quelle des Risø-Gerätes zu kalibrieren. Diese Kalibrierung wurde in Zusammenarbeit mit Dr. Markus Fuchs durchgeführt und ist in Fuchs (2001) ausführlich beschrieben. Zusammenfassend wird hier nur kurz der Ablauf dieser Kalibrierung beschrieben.

Zunächst wurde ein geeignetes Probenmaterial ausgewählt, d.h. verschiedene Lumineszenzeigenschaften ausgewählter Materialien wurden bestimmt und verglichen. Zur Anwendung kam schließlich kommerziell erhältliches sedimentäres Quarzmaterial M32 (S.C.R.-SIBELCO, Belgien). Dieses Material wurde nochmals aufbereitet, um andere Minerale aus der Probe zu entfernen. Schließlich wurde die Korngröße 90-125  $\mu\text{m}$  abgesiebt. Das verbleibende Material wurde mittels einer  $^{60}\text{Co}$ - $\gamma$ -Bestrahlungsanlage von Herrn Dipl.-Phys. M. Niedermayer am Bundesamt für Strahlenschutz in Oberschleißheim mit einer bekannten Dosis bestrahlt. Schließlich wurde das Material mit dem SAR-Protokoll mit dem Risø-Messgerät gemessen. Aus der bekannten  $\gamma$ -Dosis, die vom Material absorbiert wurde und der gemessenen Bestrahlungszeit mit der im Risø-Messgerät eingebauten  $\beta$ -Quelle, die das selbe Lumineszenzsignal erzeugt wie die  $\gamma$ -Dosis, kann auf die Dosisleistung der eingebauten Quelle geschlossen werden. Die Kalibrierung gelang mit einem Fehler von 4 %.

Nun wurde eine ähnliche Vorgehensweise zur Kalibrierung der  $^{137}\text{Cs}$ -Quelle verfolgt. Das oben erwähnte Quarz-Material wurde wiederum verwendet. Das Material wurde im RL-Messgerät auf der  $^{137}\text{Cs}$ -Quelle bestrahlt und die Dosis mittels des SAR-Protokolls im Risø-Messgerät bestimmt. Dieser Vorgang wurde zunächst mit Material durchgeführt, das nur lose auf den Probenträger gelegt wurde (die Klebeschicht der Kunststoffolie wurde entfernt). Dennoch wurde darauf geachtet, möglichst eine Einkornlage zu erzeugen (Abbildung 3.12). In einem zweiten Experiment wurde das Material, wie in Abbildung 3.10 dargestellt, auf der Klebefolie fixiert. Nach der Bestrahlung wurde die Probe durch ein mehrstündiges Bad in Aceton von der Folie gelöst, anschließend mit Ethanol und Wasser gespült und getrocknet. Bei beiden Experimenten wurde das Material für die Messungen im Risø-Messgerät mittels Silikonspray auf Aluminiumtellern präpariert. Durch den Vergleich der Ergebnisse sollte die Notwendigkeit

### 3. Messtechnik

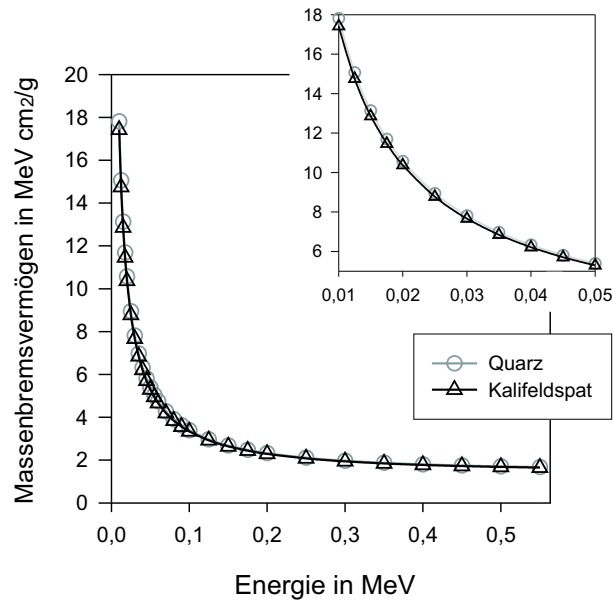


Abbildung 3.11.: **Massen-Bremsvermögen von Quarz und Feldspat.** Vergleich der Werte für Quarz und Feldspat. Das kleine Diagramm vergrößert den Bereich niedriger Energien.

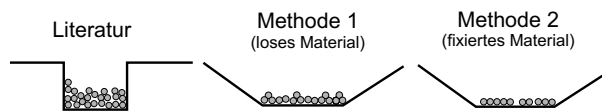


Abbildung 3.12.: **Unterschiedliche Probengeometrien.** Die Abbildung zeigt die unterschiedlichen Probengeometrien. Ganz links die von Trautmann (1999) verwendete Technik. In der Mitte die Technik mit nicht fixiertem Material. Rechts die Technik mit Klebefolie.

der Klebefixierung überprüft werden. Bestrahlt und gemessen wurden jeweils 8 Scheibchen. Das Ergebnis ist in Abb. 3.13 zu sehen. Die Verteilung der Proben, die lose auf dem Probenträger lagen, ist deutlich breiter als die der fixierten Proben. Obwohl bei einer geringen Probenzahl von 8 keine verlässliche statistische Aussage getroffen werden kann, läßt dieses Ergebnis die Präparation der Probe in einer fixierten Einkornlage als günstig erscheinen. Aus den Ergebnissen der acht fixierten Proben wurde schließlich ein Mittelwert gebildet. Die Kalibrationsprozedur ergab für die  $^{137}\text{Cs}$ -Quelle mit der beschriebenen Probengeometrie am 20.12.2000 eine Dosisleistung von  $0,00344 \pm 0,00016 \text{ Gy s}^{-1}$ , d.h. mit einem Fehler von knapp unter 5 %.



### 3.2. Radiolumineszenz-Messgerät mit Einzelphotonenzählung

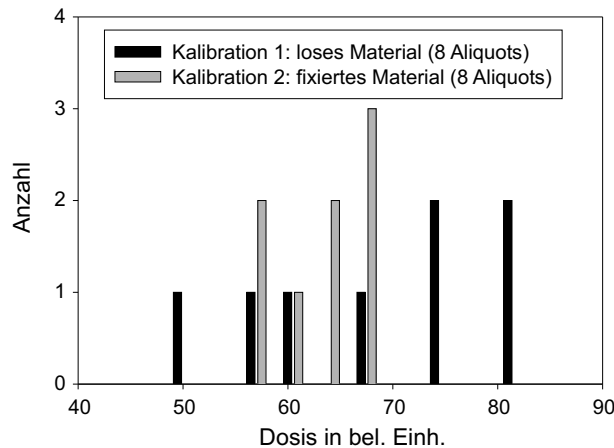


Abbildung 3.13.: **Kalibration mit unterschiedlichen Methoden.** Die Verteilung der Ergebnisse der beiden Kalibrationen. Die Methode mit losem Material zeigt eine wesentlich breitere Verteilung.

#### 3.2.4. Detektionseinheit

##### Photomultiplier

Um Messungen im nahen IR-Bereich durchführen zu können, wurde ein R943-02 Photomultiplier (Hamamatsu) mit GaAs(Cs)-Photokathode mit einem Eintrittsfenster aus Quarzglas ausgewählt. Dieser Typ besitzt eine spektrale Empfindlichkeit im Bereich von 160-930 nm, wobei ein Plateau mit hoher Empfindlichkeit im Bereich 300-850 nm existiert (Abb. 3.14). Die Photokathode besitzt eine Größe von 10x10 mm. Photomultiplier mit einer im IR-Bereich empfindlichen Photokathode besitzen ein höheres Untergrundrauschen, da bereits die Raumtemperatur zur thermischen Anregung der Photokathode ausreicht. Um die schwachen Lumineszenzsignale mit einem ausreichenden Signal-Rausch Verhältnis detektieren zu können, muss der Photomultiplier gekühlt werden. Der Photomultiplier wird deshalb in einem Kühlgehäuse (LCT50, Thorn EMI) betrieben. Dieses Gehäuse sorgt für eine Kühlung bis zu -30 °C durch ein Peltierelement, dessen Abwärme über eine Wasserkühlung abgeführt werden muss. Die Elektronik des Gehäuses hält die Temperatur auf 0,1 °C konstant, auch bei Temperaturschwankungen des Kühlwassers um 10 °C. Für die Spannungsversorgung des Photomultipliers sorgt ein stabilisiertes Hochspannungsnetzgerät (PM28B, Thorn EMI).

Um den idealen Arbeitspunkt des Photomultipliers zu bestimmen, wurde das Temperaturverhalten in einem Experiment aufgenommen. Dabei wurde für verschiedene Temperaturen des PMT die Emission eines  $\beta$ -Lichtes<sup>1</sup> sowie der Untergrund gemessen. Die Ergebnisse sind in Abbildung 3.15 (rechts) dargestellt. Der Untergrund nimmt mit abnehmender Temperatur kontinuierlich ab, das Signal nimmt sogar mit abnehmender Temperatur leicht zu. Deshalb ergibt sich

<sup>1</sup>Ein  $\beta$ -Licht besteht aus einer fluoreszierenden Substanz, die mit einem langlebigen radioaktiven Nuklid vermischt wird. So entsteht eine Lichtquelle mit hoher zeitlicher Konstanz.

### 3. Messtechnik

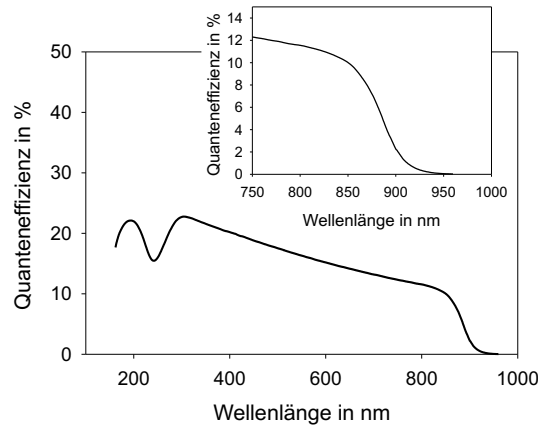


Abbildung 3.14.: **Quanteneffizienz des PMT R943-02.** Im kleinen Diagramm der nahe IR-Bereich als Vergrößerung (nach Herstellerangaben der Fa. Hamamatsu).

ein idealer Arbeitspunkt bei etwa  $-30^{\circ}\text{C}$ . Im praktischen Einsatz kommt ein weiterer Effekt hinzu. Durch die örtliche Nähe von  $^{137}\text{Cs}$ -Quelle und Photokathode kommt es - trotz Abschirmung der Quelle durch Bleiplatten - zu einer Anregung der Photokathode durch die  $\gamma$ -Strahlung der Quelle. Deshalb ist der Untergrund auch bei Temperaturen im Bereich von  $-20^{\circ}\text{C}$  noch durch diese Strahlungsanregung dominiert. Abschließend wurde der Hochspannungs-Arbeitspunkt des Photomultipliers ermittelt. Aus Abbildung 3.15 (links) ist ersichtlich, dass der Arbeitspunkt des Photomultipliers bei etwa 1600 V liegt. Hier zeigt die Empfindlichkeit ein Plateau, d.h. die Messergebnisse sind unempfindlich gegenüber geringen Schwankungen der Hochspannung. Gleichzeitig bleibt bei dieser Spannung der Untergrund noch in einem niederen Bereich.

#### Optische Filter

Da der Photomultiplier eine Empfindlichkeit bis in den UV-Bereich besitzt, müssen optische Filter eingesetzt werden, um aus dem Emissionsspektrum der Probe die gewünschte Einzelemission zu separieren. Da speziell die IR-Emission in dieser Arbeit untersucht werden sollte, bestand eine Aufgabe in der Suche geeigneter Filter für den entsprechenden Bereich. In Abb. 3.16 ist eine Auswahl an Filtern für den nahen IR-Bereich zusammengestellt. Aus diesen Filtern musste nun eine geeignete Kombination ausgewählt werden, die für eine ausreichende Trennung der IR-Emission von der dicht benachbarten roten Emission sorgt. Die Experimente zu diesem Problem und Empfehlungen hinsichtlich der Filterkombination finden sich in Kapitel 5.3.

#### 3.2.5. Bleicheinrichtung

Um an einer Probe in der Messkammer eine vollständige Dosisbestimmung ohne Störungen vornehmen zu können, wurde eine Möglichkeit zur Bleichung der Proben im Messgerät geschaffen. Hierbei wird eine externe Lichtquelle über

### 3.2. Radiolumineszenz-Messgerät mit Einzelphotonenzählung

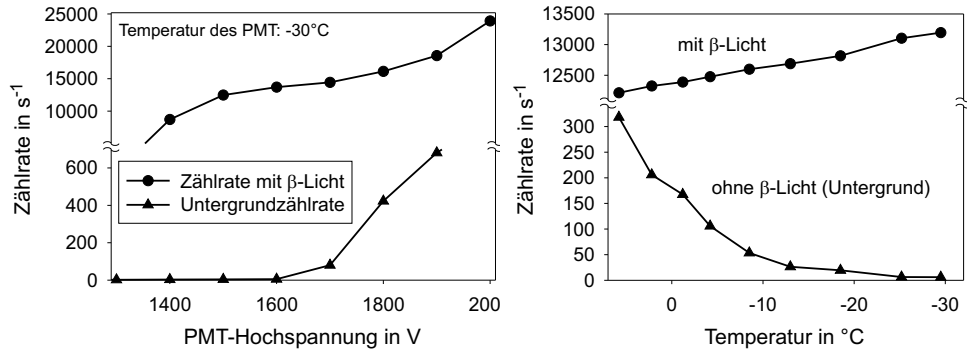


Abbildung 3.15.: **Temperaturverhalten des PMT R943-02 (rechts).** Im unteren Teil des Diagramms das Verhalten des Untergrundes. Oben die Veränderung in den Messungen mit  $\beta$ -Licht. **Hochspannungsverhalten des PMT R943-02 (links).** Im unteren Teil des Diagramms das Verhalten des Untergrundes. Oben die Veränderung in den Messungen mit  $\beta$ -Licht.

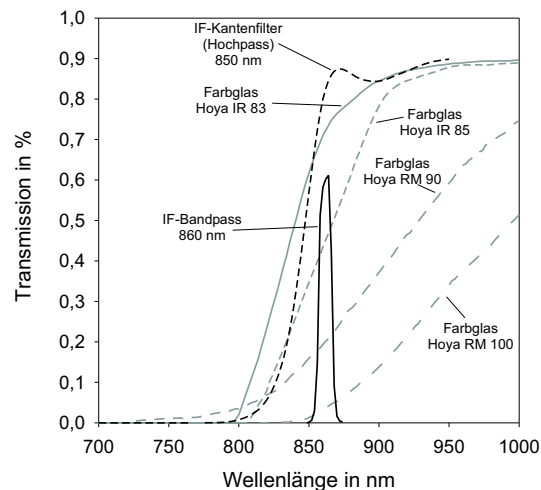


Abbildung 3.16.: **Optische Filter für den IR Bereich.** Eine Auswahl an optischen Filtern im IR-Bereich. Die Farbglassfilter stammen aus der Serie der Fa. Hoya (jeweils 2,5 mm Dicke), die Interferenzfilter (IF) von der Fa. Andover (Diagramm nach Herstellerdaten).

### 3. Messtechnik

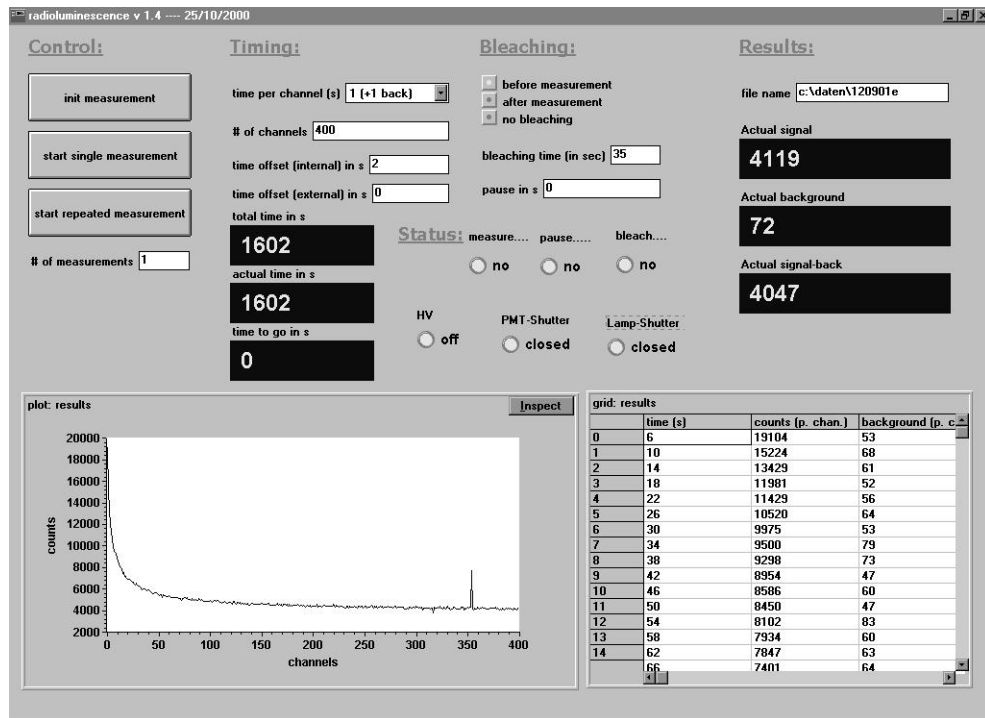


Abbildung 3.17.: Steuerprogramm des RL-Messgerätes.

einen Lichtleiter in die Messkammer eingekoppelt. Ein Photoverschluss sorgt für die Steuerung der Belichtung der Probe. Es wurden Versuche mit einer Halogenlampe durchgeführt, die jedoch nicht zum gewünschten Ergebnis führten. Die Probe wurde zwar gebleicht, es liess sich jedoch keine vollständige Rückstellung des Signals erreichen. Offensichtlich sind zur Bleichung auch die bei der Halogenlampe fehlenden UV-Komponenten notwendig. Deshalb wurde eine Quecksilber-Xenon-Lichtbogenlampe installiert. Um ein sonnenähnliches Spektrum zu erhalten, werden durch einen optischen Filter (WG 225, 3 mm, Schott) die harten UV-Komponenten aus dem Licht der Lampe entfernt.

Zu beachten ist, dass die Probe während der Bleichung auf der Quelle verbleibt, d.h. es findet eine Anregung der RL auch während der Bleichung statt. Aufgrund der hohen Intensität der Bleichlampe und der geringen Dosisleistung der Quelle bleibt die Bleichung der dominierende Prozess.

#### 3.2.6. Signalverarbeitung und Ablaufsteuerung

Die Signale des Photomultipliers werden durch einen Vorverstärker mit eingebautem Diskriminator<sup>2</sup> (ADIF1, Thorn EMI) verstärkt, bevor sie an eine PC-Zählerkarte (CT1, Thorn EMI) weitergeleitet werden. Die Steuerung der

<sup>2</sup>Der Diskriminator gibt Eingangspulse nur an den Ausgang weiter, wenn die Pulshöhe eine bestimmte Schwelle überschreitet. Damit werden niedrige Pulse, die durch Rauschen entstehen, aussortiert.

### 3.3. Radiolumineszenz mit Röntgenstimulation

Hochspannung und der Photoverschlüsse erfolgt über die TTL Ausgänge einer PC-Messkarte (Keithley).

Die Ablaufsteuerung der Experimente und die weitere Datenverarbeitung übernimmt ein Steuerungsprogramm, das in verschiedenen Versionen für diesen Zweck mit der Programmierumgebung TestPoint 3.0/4.0 (Keithley) erstellt wurde. Die für Standardmessungen eingesetzte Version RL 1.4 ist in Abb. 3.17 zu sehen. Das Programm erlaubt die Veränderung der Integrationszeit des Detektors und die Eingabe der Anzahl der Kanäle für eine Messung. Schließlich kann eine Bleichung der Probe vor oder nach der Messung durchgeführt werden und ein kompletter Messvorgang kann mehrfach durchlaufen werden. Zur Kontrolle des Experiments verfügt das Programm über Statusanzeigen für die Hochspannungsversorgung und den Zustand der Photoverschlüsse. Die aktuelle Signalthöhe wird ebenso wie der Untergrund angezeigt, Informationen über die Dauer der Messung und verbleibende Messzeit lassen sich ablesen. Der Zeit-Offset zwischen Bestückung der Quelle mit der Probe und Start der Messung sowie der interne Offset zwischen Start der Messung und tatsächlichem Beginn der Messung können im Programm eingegeben werden und werden bei der Berechnung der Messzeit berücksichtigt.

Da es sich bei Messungen der Radiolumineszenz in der Messkammer meist um Langzeitmessungen über mehrere Stunden oder gar Tage handelt, ist es wichtig, den aktuellen Signaluntergrund des Messgerätes zu bestimmen. Bestimmungen des Untergrundes lediglich vor und nach der Messung sind zu grob. Deshalb wird bei diesem Messgerät ein anderer Ansatz verfolgt. Der Untergrund wird direkt nach Aufnahme jedes Messpunktes bestimmt und sofort vom Signal subtrahiert. Dazu ist vor dem Photomultiplier ein Photoverschluss angebracht, der nach jeder Messung verschlossen wird, bevor eine Messung des Untergrundes vorgenommen wird. Durch den Öffnungs- und Schließprozess des Verschlusses kommt es aber zu elektronischen Störungen der Messungen. Da diese Störungen auf elektronischem Wege nur sehr mühsam beseitigt werden können, wurde eine andere Lösung gefunden. Nach Öffnung und Schließung des Verschlusses wird jeweils eine Messung eingefügt, deren Daten nicht verwendet werden. Der Ablauf eines kompletten Messzyklusses ist in Abbildung 3.18 dargestellt. Die Länge eines Messzyklusses entspricht daher vier mal der Länge der Integrationszeit.

Im Messprogramm wird der Untergrund sofort vom Signal abgezogen. In der Datei der Messung wird das korrigierte Signal und der Untergrund abgespeichert. Dies bietet die Möglichkeit der Rückrechnung auf den rohen Messwert. Insbesondere bei Proben sehr geringer Intensität lässt sich so eine Mittelung des Untergrundes durchführen, um die statistischen Schwankungen der Untergrundmessung zu minimieren.

### 3.3. Radiolumineszenz mit Röntgenstimulation

Für den Einsatz einer Röntgenquelle zur Stimulation von Radiolumineszenz sprechen eine Reihe von Gründen. Die Dosisleistung einer Röntgenquelle lässt sich über einen weiten Bereich verändern, die Quelle lässt sich auch ganz abschalten. Bei RL mit Röntgenanregung kann die Probe auf einer Heizplatte

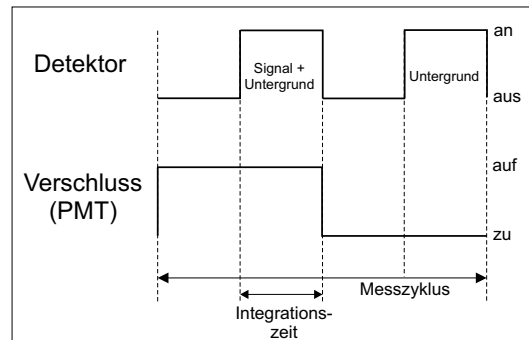


Abbildung 3.18.: **Messzyklus des RL-Messgerätes.** Um elektronische Störungen durch den Verschluss zu vermeiden, wird nach einer Änderung des Verschlusszustandes ein Integrationsintervall verworfen.

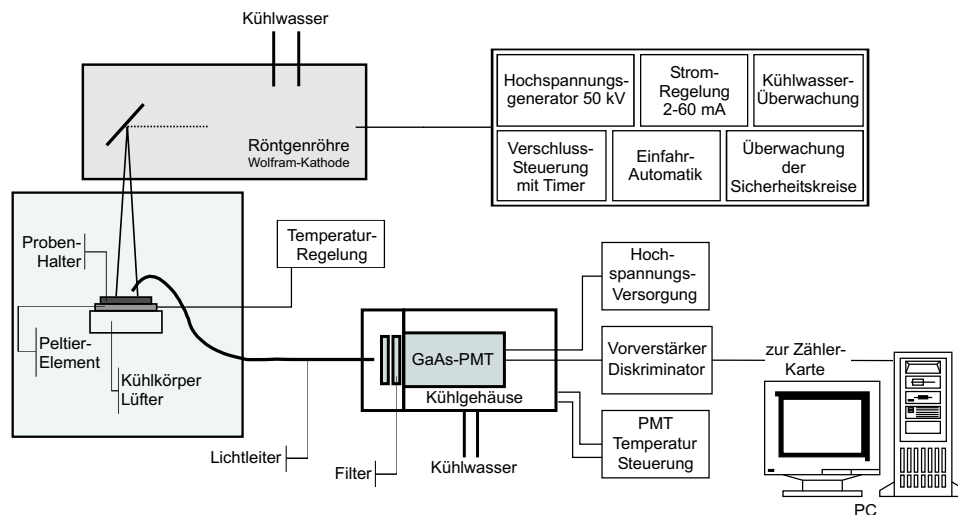


Abbildung 3.19.: **Messgerät für RL mit Röntgenstimulation.**

positioniert werden, um Messungen bei unterschiedlichen Temperaturen durchzuführen, die näheren Aufschluss über physikalische Effekte geben können.

### 3.3.1. Aufbau des Messgerätes

Das RL-Messgerät mit Röntgenanregung besteht aus einer Röntgenröhre mit Steuergerät, einer Messkammer, die die Probe aufnimmt, und einer Detektionseinheit, die der Detektionseinheit des RL-Messgerätes aus Kapitel 3.2 entspricht. Der Röntgenstrahl wird von oben in die Messkammer eingestrahlt, so dass eine konventionelle Präparation der Probe auf einem Aluminium- oder Stahlscheibchen durchgeführt werden kann. Das Lumineszenzlicht wird über einen Lichtleiter zu dem extern angebrachten Photomultiplier geführt.

Da dieses Gerät vollständig aus Einzelkomponenten aufgebaut werden musste, war besonders die Planung und Umsetzung der Abschirmungs- und Sicherheits-

### 3.3. Radiolumineszenz mit Röntgenstimulation

maßnahmen aufwändig und langwierig. Der Röntgenstrahl wird unmittelbar nach Austritt aus dem Röhrengehäuse in die Messkammer aus 8 mm dickem Stahl eingekoppelt, um freie Strahlabschnitte zu vermeiden (Abb. 3.19). Die Messkammer selbst sowie eine den Aufbau umschließende Plexiglas-Schutzhaube sind mit elektronischen Schutzkreisen gesichert. Jeder dieser Schutzkreise ist mit zwei in Serie geschalteten Schaltern (je ein mechanischer und ein magnetischer Schalter) gesichert. Aufgrund dieser umfangreichen Sicherheitsausrüstung wurde das Gerät vom TÜV als Vollschutzgerät abgenommen (TÜV-Bescheinigung vom 28.2.2001). Das bedeutet, dass während der Messungen keine besonderen Sicherheitsvorkehrungen zu treffen sind (Sicherung und Verlassen des Raumes oder von Bereichen des Raumes). Dies ermöglicht einen effizienten Betrieb der Anlage und eine reibungslose Integration in die bestehende Labornutzung.

#### 3.3.2. Röntgenröhre und Röntgeneratore

Zum Einsatz kommt eine Röntgenröhre (FK61-20W, Seifert) mit Wolfram-Anode und einer Leistung von 3000 W (50 mA bei 60 keV). Die Röhre besitzt ein Beryllium Fenster mit 0,25 mm Dicke. Der bei der Anlage genutzte Punktfokus besitzt eine Größe von 2,0 x 1,2 mm auf der Anode. Der zugehörige Generator (ID 3003, Seifert) liefert die Hochspannung für die Röhre, prüft den Kühlwasserfluss und besitzt eine komfortable Bildschirm-Dialogsteuerung für Strom und Spannung sowie für die Steuerung der Verschlusszeiten des Röhrengehäuses. Als eine weitere wichtige Einrichtung dieses Generators ist die Einfahrautomatik zu nennen. Abhängig von der Dauer des Stillstandes der Röhre wird diese vor der Benutzung automatisch eingefahren, d.h. Strom und Spannung werden schrittweise auf die gewünschten Maximalwerte erhöht. Dadurch wird die Abnutzung der Röhre stark vermindert und somit auch die Änderung der Dosisleistung für eine feste Strom-Spannungs-Einstellung reduziert. Diese Verbesserung der Konstanz der Dosisleistung der Röhre ist insbesondere für quantitative Anwendungen in der Lumineszenzdatierung von großem Vorteil.

Bei den ersten Messungen wurde ein erheblicher Messuntergrund festgestellt. Weitere Versuche zeigten, dass der Untergrund vom Röhrenstrom abhängt. Möglicherweise verursacht die thermische Strahlung des Brennflecks auf der Anode auch durch das Beryllium-Fenster hindurch diesen Untergrund im IR-empfindlichen Photomultiplier. Hier müssen für weitere Messungen bessere Abschirmungen getestet werden.

#### 3.3.3. Probenhalter und Fokusbestimmung

Der Probenhalter der Messkammer besteht aus einem Aluminiumblock, der eine Aufnahmebohrung von 10 mm Durchmesser für die üblicherweise verwendeten Alu- und Stahlscheibchen besitzt. Dieser Block ist mit einem thermisch leitenden 2-Komponenten-Kleber (TBS, Electrolube) auf einem Peltierelement (RS Components) fixiert. Das Peltierelement wird über eine regelbare Strom-Spannungsquelle (CPX 200, TTI) versorgt. Durch diese Anordnung lässt sich die Temperatur der Probe von Raumtemperatur bis zu 140 °C einstellen. Die Temperatur wird mit einem Messfühler (Testo) kontrolliert, der in den Aluminium-

### 3. Messtechnik

Tabelle 3.5.: **Kalibration der Röntgenquelle.** Aufgeführt sind die drei mit unterschiedlichen Stromstärken bestrahlten Gruppen von Scheibchen

Strom in mA	Bestrahlungsdauer in s	Anzahl	Dosis in Gy	Dosisleistung in Gy s <sup>-1</sup>
12	32	10	28,81 ± 0,17	0,9002 ± 0,0053
24	16	10	28,51 ± 0,43	1,7819 ± 0,0269
48	8	4	26,68 ± 0,33	3,335 ± 0,0413

Probenträger eingeschraubt werden kann. Wünschenswert wäre hier eine Heizplatte mit einem Regelbereich bis etwa 500 °C, der Aufbau mit Peltier-Heizung ist lediglich als Versuchsanordnung konzipiert.

Bevor das Messgerät mit Röntgenanregung für Experimente genutzt werden konnte, musste die Lage des Brennflecks in der Messkammer bestimmt werden. Dazu wurde ein Röntgenfilm verwendet. Der Röntgenfilm (XAR-5, Kodak) wird üblicherweise in den Biowissenschaften zur Autoradiographie eingesetzt und besitzt eine sehr hohe Empfindlichkeit gegenüber ionisierender Strahlung. Deshalb musste die Röntgenröhre mit sehr geringer Leistung betrieben werden. Zur Bestimmung der Lage des Röntgenstrahls wurde auf den Röntgenfilm ein Probenscheibchen aufgeklebt. Der Film wurde dann so in die Messkammer eingelegt, dass das aufgeklebte Scheibchen in der Bohrung des Probenhalters zu liegen kam. Auf diese Weise wurde die Position des Films in der Kammer fixiert. Anschließend wurde der Film mit Röntgensstrahlung beschossen. Die Entwicklung der Filme (GBX Developer+Fixer, Kodak) erfolgte unter abgedunkeltem Rotlicht in Schalen. Nach der Entwicklung wurde der Film zurück in die Messkammer gelegt, um den Probenhalter in Richtung Röntgenstrahl nachzuführen. Diese Prozedur wurde so lange wiederholt, bis der Röntgenfleck direkt über dem aufgeklebten Scheibchen zu sehen war. Der Röntgenstrahl besitzt am Probenort einen Durchmesser von etwa 20 mm.

#### 3.3.4. Kalibration der Röntgenquelle

Die Intensität der Röntgenstrahlung ist als Energie pro Zeit und Fläche definiert:

$$I = \frac{E}{A \cdot t} \quad (3.5)$$

Die Schwächung der Röntgenstrahlung beim Durchgang durch Materie ist durch

$$I = I_0 \exp\left(-\frac{\mu}{\rho} \rho x\right) \quad (3.6)$$

gegeben, mit der Dichte  $\rho$  des Absorbermaterials und dem energieabhängigen Schwächungskoeffizient  $\mu$  als zweiter Materialkonstante. Der Schwächungskoeffizient lässt sich für unterschiedlichste Materialien für Energien zwischen 0,001 und 100.000 MeV mit dem Programm XCOM berechnen (Berger et al., 2001). Für Quarz ergibt sich für monoenergetische Röntgenstrahlung von 50 keV eine



### 3.3. Radiolumineszenz mit Röntgenstimulation

Abnahme der Intensität beim Durchgang durch eine Schicht von 100  $\mu\text{m}$  um lediglich etwa 1 %.

Um den Gradienten dennoch möglichst klein zu halten, wurden für erste Datierungsmessungen mit der Röntgenröhre feinkörnige Proben mit einem Korndurchmesser im Bereich 4-11  $\mu\text{m}$  vorgesehen. Für dieses Material wurde auch eine Kalibrierung der Röntgenquelle durchgeführt.

Dazu wurde eine ausgesuchte Feinkornproben (Feinkornseparat einer Lößprobe aus Dolni Vestonice) zunächst durch 300 s Stimulation mit blauem Licht (Risø OSL/TL-DA-15, blaue Dioden, 90% Leistung) zurückgesetzt. Die Proben wurden anschließend in der Messkammer bei drei verschiedenen Röhrenströmen bestrahlt. Die Dosis der bestrahlten Scheibchen wurden mit einem IRSL-Single-Aliquot Protokoll in einem Risø OSL/TL-DA-12 Messgerät bestimmt. Die interne  $^{90}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Y}$ - $\beta$ -Quelle dieses Gerätes wurde im Rahmen der Arbeit von Kadereit (2000) für feinkörniges Probenmaterial kalibriert. Das adaptierte SAR-Protokoll wurde ebenfalls aus der Arbeit von Kadereit (2000) entnommen, wo seine Anwendbarkeit bis in einen Dosisbereich von ca. 30 Gy gezeigt wurde.

Die Einzelergebnisse der Kalibration sind in Tabelle 3.5 zu finden. Aus diesen Daten berechnet sich die lineare Kalibrationsfunktion, mit der vom Röhrenstrom auf die Dosisleistung geschlossen werden kann:

$$\dot{D}_X = 0,1238 + 0,0672 \cdot I_R \quad (3.7)$$

mit  $\dot{D}_X$  als Dosisleistung der Röntgenröhre in  $\text{Gy s}^{-1}$  und  $I_R$  als Röhrenstrom in mA. Aufgrund der niederen statistischen Fehler der Messung wird für die Kalibration ein realistischer Fehler von 5 % angesetzt.



## 4. Radiolumineszenz

### 4.1. Einführung und grundlegende Modelle

Unter Radiolumineszenz versteht man die Emission von Lumineszenz unter der Einwirkung von ionisierender Strahlung (Kapitel 2.1.2). In den Bereichen Dosimetrie und Datierung wurde die direkte Messung der Radiolumineszenz bisher nur am Rande in Erwägung gezogen. Eine der wenigen Arbeiten beschäftigt sich mit der Anwendung von Radiolumineszenz von Quarzen in der Dosimetrie (Marazuev et al., 1995).

Erst Trautmann et al. (1998) schlugen die Nutzung der Radiolumineszenz zur Datierung von Feldspäten vor. Dabei zeigten sie zunächst nur dosimetrische Effekte in der Radiolumineszenz von Feldspäten. Der nächste Schritt war die Präsentation einer Datierungsmethode, die speziell die Radiolumineszenzemission des Feldspates im infraroten Spektralbereich zur Bestimmung der Äquivalenzdosis einsetzt (Trautmann et al., 1999).

Der Prozeß, der zur Emission von Radiolumineszenz führt, ist dabei prinzipiell derselbe, wie er auch in der Natur bei der Bestrahlung mit natürlicher ionisierender Strahlung stattfindet. Einziger Unterschied ist die Dosisleistung der ionisierenden Strahlung. Während Dosisleistungen in der Natur in der Größenordnung von 1 Gy/ka liegen, werden zur Messung der Radiolumineszenz im Labor Dosisleistungen in der Größenordnung von 1 Gy/h bis hin zu über 1 Gy/s verwendet.

Die Bestrahlung des Materials im Labor führt somit zur Anhebung einer hohen Anzahl von Elektronen in das Leitungsband. Von dort wird ein grosser Teil direkt wieder ins Valenzband zurückfallen. Ein gewisser Teil jedoch wird zum einen in die Elektronenfallen und zum anderen in die Rekombinationszentren gelangen. Die Energiedifferenz zwischen dem Leitungsband und dem Zustand, in den das Elektron gelangt, wird in bestimmten Fällen als Photon emittiert (Abb. 4.1 rechts).

#### 4.1.1. Infrarot-Radiolumineszenz

Feldspäte zeigen bei der optisch stimulierten Lumineszenz eine Besonderheit. Während andere Materialien wie z.B. Quarz mit abnehmender Energie des Stimulationslichtes eine Abnahme der Intensität der emittierten Lumineszenz zeigen und bei Stimulation mit IR-Strahlung keinerlei Lumineszenz emittieren, wurde bei Feldspäten ein Resonanzmaximum im Stimulationsspektrum bei etwa 1,4 eV entdeckt (Hütt et al., 1988). Poolton et al. (1995) präsentieren Messungen des Stimationsmaximums bei 1,41-1,44 eV in Abhängigkeit von der Mineralogie der untersuchten Feldspäte.

#### 4. Radiolumineszenz

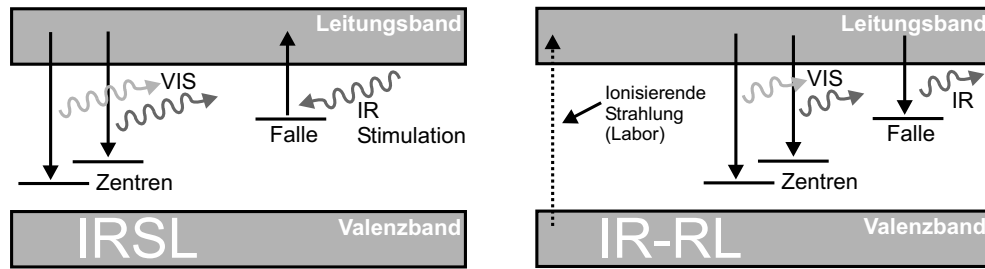


Abbildung 4.1.: **Radiolumineszenz im Bändermodell.** **Links:** Das Modell der infrarot stimulierten Lumineszenz (IRSL). **Rechts:** Das Modell der infrarot-Radiolumineszenz (IR-RL). Die durch die ionisierende Strahlung angehobenen Elektronen fallen dabei nicht nur in die Rekombinationszentren sondern auch in die Elektronenfallen und geben dabei Lumineszenz im IR-Bereich ab.

Obwohl die Energie des Stimulationsmaximums eine Instabilität des Lumineszenzsignals aufgrund der geringen Fallentiefe vermuten lässt, sind Datierungen mit infrarot stimulierter Lumineszenz (IRSL) an Feldspäten bis in die Größenordnung von einigen 10.000 Jahren erfolgreich (Duller, 1992). Erklärt wird dieser Effekt auf unterschiedliche Weise. Zum einen wird ein thermisch unterstützter Prozess vorgeschlagen, zum anderen wäre auch ein lokaler Übergang des Elektrons in das zugehörige Rekombinationszentrum denkbar (Abb. 4.2).

Betrachtet man nun das Radiolumineszenz-Emissionsspektrum von Feldspäten (Abb. 3.7) entdeckt man eine Emission im IR-Bereich, etwa an der Stelle, an der Feldspäte bei IRSL-Messungen stimuliert werden. Trautmann et al. (1999) schlug nun ein Modell vor, bei dem diese Emission durch Elektronenübergänge aus dem Leitungsband direkt in die dosimetrische IRSL-Elektronenfalle erklärt wird (Abb. 4.1). Damit wären mit dieser Emission direkt Informationen über den Füllungszustand der Elektronenfalle verknüpft, eine Neuheit in der Lumineszenzdosimetrie. Alle bisher verwendeten Verfahren basieren auf Emissionen, die durch Elektronenübergänge aus dem Leitungsband in Rekombinationszentren erzeugt werden.

#### 4.2. Verhalten der IR-RL

Legt man das in Abbildung 4.1 vorgestellte Modell zu Grunde, lässt sich folgendes Verhalten der IR-RL annehmen:

- Die Anzahl der Elektronen, die pro Zeiteinheit in die Elektronenfalle gelangen (und damit zur Emission von IR-Photonen führen), hängt davon ab, wie stark diese Falle besetzt ist. Sind bereits viele Zustände in der Falle besetzt, ist die Wahrscheinlichkeit für einen solchen Übergang geringer als bei einer leeren Falle. Die Zahl der Elektronen in der Falle ist wiederum von der Dosis abhängig, die das Material erhalten hat. Somit wird das IR-RL-Signal mit wachsender Dosis abnehmen. Die ‚Wachstumskurve‘ hat

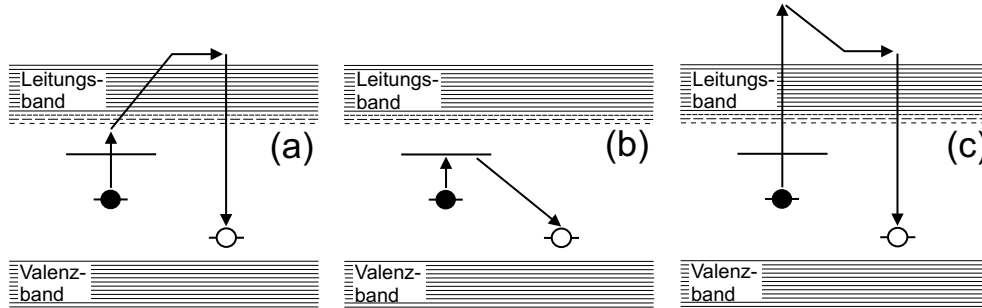


Abbildung 4.2.: **Modell der IRSL.** (a) IRSL mit thermischer Unterstützung. Durch die IR Stimulation gelangt das Elektron in einen tiefen (lokalen) Zustand des Leitungsbandes. Erst durch thermische Unterstützung erreicht es seine Beweglichkeit im Leitungsband. (b) IRSL als lokaler Übergang. Das Elektron wird durch die IR-Stimulation in einen angeregten Zustand gebracht. Von dort aus kann es mit einem Rekombinationszentrum lokal rekombinieren. (c) OSL mit höheren Stimulationsenergien. Zum Vergleich das Modell bei Stimulation mit höheren Energien. Dabei gelangt das Elektron direkt in einen freien Zustand im Leitungsband. Nach Poolton et al. (1995).

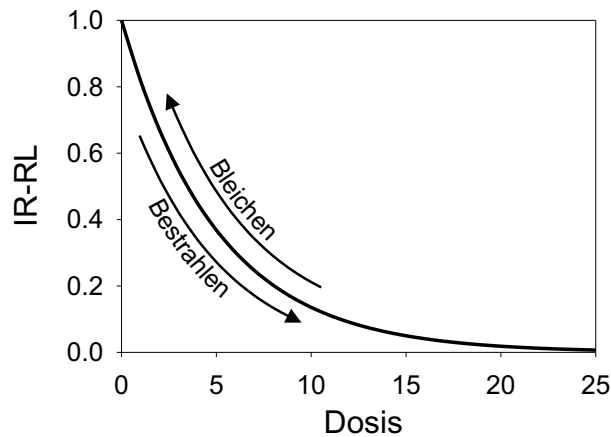


Abbildung 4.3.: **RL-Wachstumskurve.** Die RL-Wachstumskurve nach dem einfachen Modell. Die Kurve wird durch Bleichen und Bestrahen reversibel in beide Richtungen durchlaufen.

#### 4. Radiolumineszenz

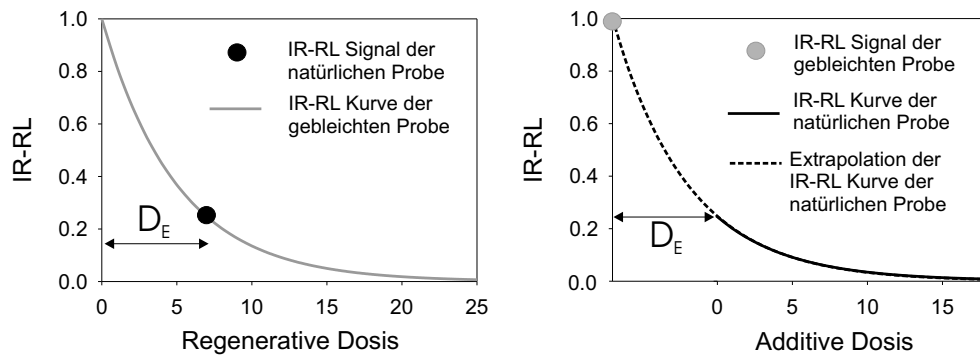


Abbildung 4.4.: **IR-RL Techniken zur Dosisbestimmung.** Im linken Diagramm die regenerative Technik, im rechten die additive Technik.

in diesem Fall die Form eines einfach exponentiellen Zerfalls (Trautmann, 1999).

- Die IR-RL sollte bei einer vollständig gefüllten Elektronenfalle auf 0 zurückgehen. Daraus ergibt sich folgende Form für die IR-RL Wachstumskurve (Abb. 4.3):

$$f(x) = a \cdot \exp(-bx) \quad (4.1)$$

- Die IR-RL sollte durch Bleichung und Bestrahlung reversibel in beide Richtungen durchlaufen werden (Abb. 4.3).
- Die Bleichung sollte auch durch IR-Strahlung möglich sein.

### 4.3. Dosisbestimmung mit der IR-RL

Die grundlegenden Prinzipien der IR-RL-Dosisbestimmung werden von Trautmann (1999) dargestellt. Es sind grundsätzlich zwei Vorgehensweisen möglich, die man als regenerativen und additiven Ansatz bezeichnen kann:

#### Der regenerative Ansatz

Bei dieser Technik läuft die IR-RL Dosisbestimmung wie folgt ab (Abbildung 4.4 links):

1. Messung des natürlichen IR-RL Signals (einzelner Messpunkt durch Kurzzeit-IR-RL-Messung).
2. Rückstellung der Probe durch Bleichen.
3. Messung der IR-RL Wachstumskurve der gebleichten Probe.
4. Einpassen des natürlichen Messpunktes in die regenerative Wachstumskurve.

### 4.3. Dosisbestimmung mit der IR-RL

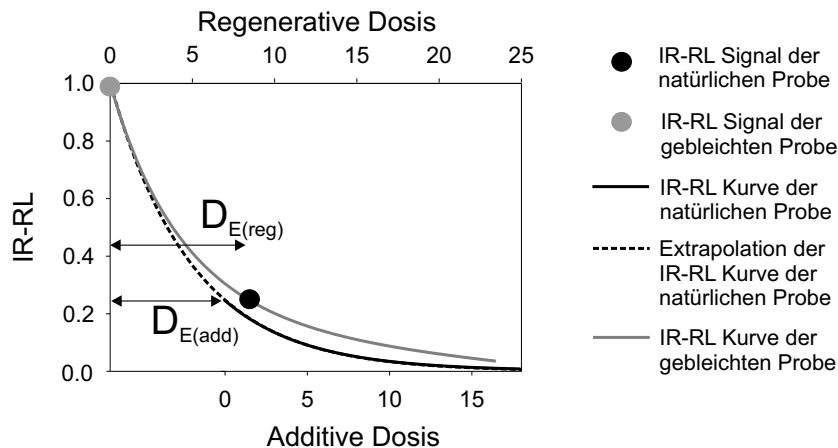


Abbildung 4.5.: **IR-RL Techniken zur Dosisbestimmung.** Durch die Kombination der additiven und regenerativen Technik erhält man eine Kontrollmöglichkeit für die Ergebnisse.

#### Der additive Ansatz

Bei dieser Technik besteht eine Dosisbestimmung aus folgenden Schritten (Abbildung 4.4 rechts):

1. Messung der IR-RL Wachstumskurve der natürlichen Probe.
2. Rückstellung der Probe durch Bleichen.
3. Messung des IR-RL Signals der gebleichten Probe (einzelner Messpunkt durch Kurzzeit-IR-RL-Messung).
4. Extrapolation der natürlichen Wachstumskurve in den negativen Dosisbereich.
5. Einpassen des Messpunktes (nach Bleichung) in die extrapolierte additive Wachstumskurve.

#### 4.3.1. Dosisbestimmung mit einem kombinierten Ansatz

Führt man für eine Probe Dosisbestimmungen mit den beiden oben erwähnten Techniken durch, sollten für beide identische Ergebnisse gewonnen werden, schließlich ist die Dosis unabhängig von der Methode mit der sie bestimmt wird. Dies bietet aber wiederum die Möglichkeit eines internen Tests der Dosisbestimmung. Bereits in Trautmann (1999) wird die Möglichkeit erwähnt, dass für eine Probe beide Techniken zum Einsatz kommen könnten und bei unterschiedlichen Ergebnissen ein Indiz für Sensitivitätsänderungen gegeben sei. In den folgenden Arbeiten des Autors wird von dieser Möglichkeit kein Gebrauch gemacht.

In der vorliegenden Arbeit wird ausschließlich der kombinierte Ansatz verwendet, da durch einen geringen Mehraufwand bei der Messung der Probe wesentlich

#### 4. Radiolumineszenz

mehr Sicherheit in der Beurteilung der Messergebnisse erlangt werden kann. Die kombinierte Technik besteht aus folgenden Schritten (Abb. 4.5):

1. Messung der (additiven) IR-RL Wachstumskurve der natürlichen Probe.
2. Rückstellung der Probe durch Bleichen.
3. Messung der (regenerativen) IR-RL Wachstumskurve der gebleichten Probe.
4. Anpassung jeweils einer exponentiellen Zerfallsfunktion an natürliche und gebleichte Messpunkte.
5. Regenerative Datenauswertung:
  - a) Bestimmung des natürlichen (Anfangs-)Signals aus der zugehörigen angepassten Funktion.
  - b) Einpassen dieses Wertes in die regenerative Funktion.
6. Additive Datenauswertung:
  - a) Bestimmung des gebleichten (Anfangs-)Signals aus der zugehörigen angepassten Funktion.
  - b) Einpassen dieses Wertes in die extrapolierte Funktion der natürlichen Probe.
7. Vergleich der auf beide Arten bestimmten Dosis.

Die konkrete numerische Ausgestaltung dieses Verfahrens wird in Kapitel 6.1.1 ausgeführt.

### 4.4. Modifikationen am IR-RL Modell

#### 4.4.1. Endlicher Grenzwert der IR-RL-Kurve

Schon bald nach den ersten Messungen der IR-RL zeigte sich, dass die reale IR-RL Kurve, nicht wie im einfachen Modell angenommen, für hohe Dosen gegen 0 sondern gegen einen endlichen Wert strebt. Es muss somit ein Mechanismus existieren, der Elektronen während der Bestrahlung wieder aus der Elektronenfalle heraushebt. Trautmann (1999) gibt einen solchen Mechanismus an: er schlägt die Schön-Klasen-Kinetik (McKeever, 1985) als Lösung für das Problem vor. Bei diesem Modell werden Elektronen thermisch (oder bei Trautmann (1999) durch die ionisierende Strahlung) aus dem Valenzband in Elektronenfallen oberhalb des Valenzbandes angeregt. In die dabei entstehenden Elektronenlöcher im Valenzband können zum Teil Elektronen aus den dosimetrischen Elektronenfallen gelangen. So kommt es zu einer Leerung der Elektronenfallen. Die Funktion zur Beschreibung der IR-RL muss im Vergleich zum einfachen Modell (Gleichung 4.1) um einen additiven Term erweitert werden:

$$f(x) = a + b \cdot \exp(-cx) \quad (4.2)$$



##### 4.4.2. Bleichung der IR-RL mit IR-Licht

Sollte das einfache Modell gültig sein, müsste sich die IR-RL durch IR-Strahlung im Bereich 800-900 nm bleichen lassen. Experimente zeigten schnell, dass dies nicht der Fall ist. Wiederum schlug Trautmann (1999) einen Erklärungsansatz für diesen Effekt vor. Bei der IRSL findet ein lokaler Übergang eines Fallenelektrons in das Rekombinationszentrum statt (Abb. 4.2 (b)). Weiterhin geht Trautmann von einer sehr geringen Anzahl von lokalen Rekombinationszentren aus. In diese Rekombinationszentren finden zwar Übergänge bei der IR-Bleichung statt, diese reichen aber nicht aus, um die Falle merklich zu leeren und damit für einen messbaren Effekt auf die IR-RL zu sorgen.

##### 4.4.3. Anmerkung zur Modellierung in der Lumineszenzdosimetrie

Die Entwicklung des IR-RL Modells ist ein typisches Beispiel für die Modellierung von Lumineszenzsystemen. Das Modell wurde schrittweise den Ergebnissen der Messungen angepasst. Es ist bisher in den seltensten Fällen gelungen, mit einem Lumineszenzmodell einen Effekt vorherzusagen, dessen Existenz dann durch Messungen bestätigt werden konnte. Der umgekehrte Fall ist vielmehr die Regel. Modelle werden nach der Entdeckung neuer Effekte um weitere Mechanismen erweitert. Dabei werden mehr und mehr Freiheitsgrade in das Modell integriert. Parameter werden je nach gewünschtem Ergebnis von Fall zu Fall verändert. So drehen sich Diskussionen oft um die Frage, ob sich mit solch komplexen Modellen nicht nahezu beliebige Effekte erklären lassen. So besitzt das oben angeführte Modell von Trautmann 15 Übergänge und 18 Parameter.

Der Einsatz von Modellen soll jedoch nicht in Frage gestellt werden. Die Hoffnung besteht, dass durch Abgleich von Modell und Messung ein tieferer Einblick in die der Lumineszenzdatierung zu Grunde liegenden physikalischen Vorgänge gelingt. Dennoch scheinen die Modelle noch nicht so weit entwickelt zu sein, um z.B. Datierungsmethoden zu verifizieren. Der Beweis der Anwendbarkeit von neuen Methoden muss bisher noch allein durch experimentelle Ergebnisse erbracht werden. Dieser empirische Ansatz wurde auch mit dieser Arbeit verfolgt. Grundlegende Effekte wurden durch Messungen überprüft, teilweise können diese Ergebnisse als Grundlage für Modellentwicklungen in der Zukunft dienen. Durch diese Ergebnisse wurden auch die Messverfahren verbessert. Abschließend sollen Vergleichsdatierungen ersten Aufschluss über die tatsächliche Leistungsfähigkeit der IR-RL Datierungsmethode bringen.



## 5. Grundlagenuntersuchungen

In diesem Kapitel sind zunächst einige grundlegende Untersuchungen und Untersuchungsmethoden sowohl der Radiolumineszenz als auch anderer Lumineszenzmethoden zusammengestellt. Anschließend werden orts aufgelöste Messungen und Experimente zu Sensitivitätsänderungen und Bleicheigenschaften der IR-Radiolumineszenz vorgestellt. Den Abschluss bildet ein erster Einstieg in Untersuchungen der Temperaturabhängigkeit der IR-Radiolumineszenz.

### 5.1. Basismessungen

Soweit nicht anders angegeben, wurden alle Messungen in diesem Kapitel mit dem RL-Messgerät mit Einzelphotonenzählung (Kapitel 3.2) durchgeführt. Die Spannung des Photomultipliers betrug 1600 V, seine Temperatur  $-21\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Nähere Erläuterungen zu den jeweils verwendeten Proben sind in Anhang A zu finden. Da die unterschiedlichen Feldspatproben bei vielen Versuchen ähnliche Ergebnisse erbracht haben, wurde für die folgende Darstellung meist nur ein repräsentatives Beispiel ausgewählt. Die meisten der nachfolgend beschriebenen Messungen wurden jeweils für einen Satz von Feldspatproben durchgeführt, um probenspezifische Effekte und Ausreißer zu identifizieren. Der Übersichtlichkeit halber wird auf die Darstellung aller Ergebnisse verzichtet, da dies auch keine weitergehenden Erkenntnisse liefern würde. Teilweise sind weitere Ergebnisse im Anhang D zu finden.

#### 5.1.1. Messung der IR-RL und Kurvenanpassung

In Abb. 5.1 ist eine typische IR-RL-Kurve einer Feldspatprobe des Materials G40 zu sehen. Gleichzeitig ist die an die Messdaten angepasste exponentielle Zerfallsfunktion im Diagramm dargestellt. Der Korrelationskoeffizient  $r^2=0,994$  deutet auf eine gute Übereinstimmung zwischen Messdaten und Funktion hin. Ähnliche Werte des Korrelationskoeffizienten wurden bei allen Messungen erzielt. Abbildung 5.2 zeigt, wie sich der Parameter  $a$  (aus Gleichung 4.2) der angepassten Funktion mit der Messdauer und damit mit der maximal applizierten Dosis ändert. Da mit diesem Parameter ein Korrekturfaktor bei der Dosisbestimmung berechnet werden kann (Gleichung 6.12), sollte eine Messung bis hin zu möglichst hohen Dosen durchgeführt werden, um eine ausreichend gute Anpassung der Funktion an die Messdaten zu erzielen. Hier muss ein Kompromiss zwischen Messdauer und Genauigkeit gefunden werden.

## 5. Grundlagenuntersuchungen

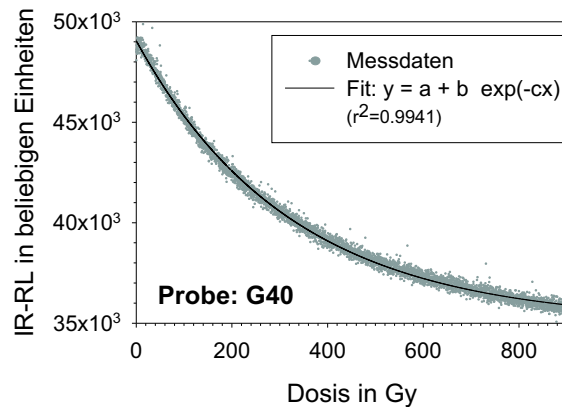


Abbildung 5.1.: **Typische IR-RL Wachstumskurve der Probe G40.** Detektionsfilter IR 83 (2,5 mm), Hoya.

### Einschaltvorgänge

Die Abbildung 5.3 zeigt den ‚Einschaltvorgang‘ der IR-RL anhand einer Messung der Probe IdCR1 (Filter: IR 83, 2,5 mm). Man erkennt einen initialen Anstieg des IR-RL-Signals vor dem Übergang in den Bereich der exponentiellen Abnahme. Denkbare Erklärungsansätze sind z.B. der Einfluss von Fallen, die bereits bei geringer Dosis in Sättigung gehen. Möglicherweise werden diese zu Beginn der Bestrahlung aufgefüllt und treten damit in Konkurrenz zur IR-RL-Falle. Sind diese Fallen schließlich gesättigt, nehmen sie nicht mehr an den Vorgängen teil, der Ablauf folgt dann der Modellvorstellung. Eine andere Möglichkeit wäre der Einfluss des roten Signals auf den IR-RL-Detektionsbereich (in Abb. 3.7 zu erkennen). Da das rote Signal mit steigender Dosis wächst, könnte der Effekt damit erklärt werden. Warum der Einfluss des roten Signals aber recht schnell an Bedeutung verliert, bliebe bei dieser Erklärung offen.

### IR-RL von Quarz

Da bei der Schweretrennung im Rahmen der Probenaufbereitung für Grobkorn-Datierungen die Feldspatfraktion nicht mit letzter Sicherheit frei von Quarz abgetrennt werden kann, stellt sich die Frage nach dem Verhalten der Radio-lumineszenz von Quarz im infraroten Spektralbereich. Abbildung 5.4 zeigt das Verhalten der IR-RL von Merck-Quarz. Für die Messung wurde ein IR 83 Glasfilter (2,5 mm) verwendet. Das Schaubild zeigt, dass Quarz zwar ein schwaches IR-RL Signal liefert, dieses jedoch über einen langen Zeitraum (und damit auch einen großen Dosisbereich) konstant bleibt und damit keinen Einfluss auf die Dosisbestimmung hat.

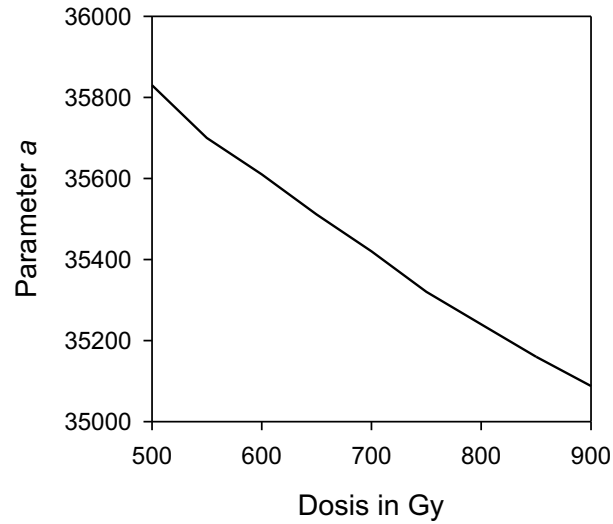


Abbildung 5.2.: **Änderung des Fits mit der Messdauer.** Änderung des Parameters  $a$  der angepassten Funktion für Probe G40, abhängig von der Messdauer (d.h. von der maximal applizierten Dosis).

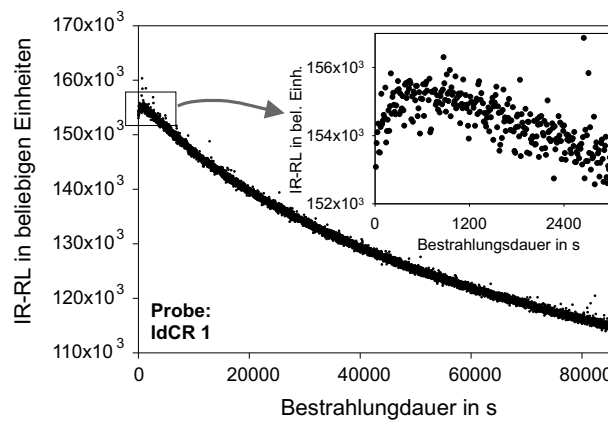


Abbildung 5.3.: **Einschaltvorgang der IR-RL.** Für die Probe IdCR1. Man erkennt in der Vergrößerung den initialen Anstieg vor dem Übergang in den exponentiellen Zerfall.

## 5. Grundlagenuntersuchungen

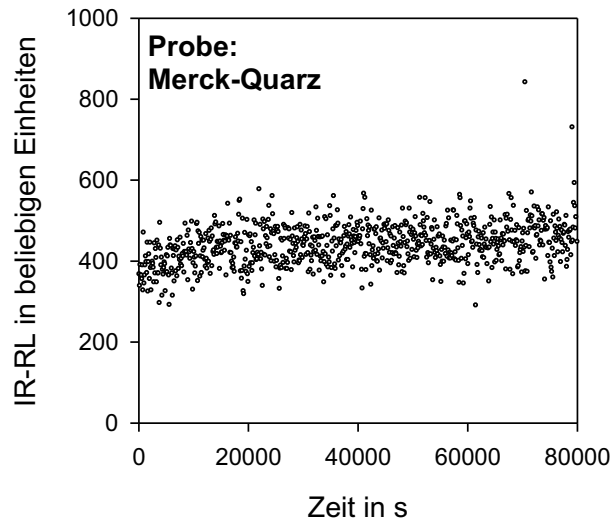


Abbildung 5.4.: **IR-RL von Quarz.** Als Material diente kommerziell erhältlicher Merck-Quarz. 80000 s Messdauer entsprechen hierbei einer applizierten Dosis von ca. 275 Gy.

### 5.1.2. Lumineszenzmessungen an den Proben

### 5.1.3. TL-, RL- und IRSL-Spektren

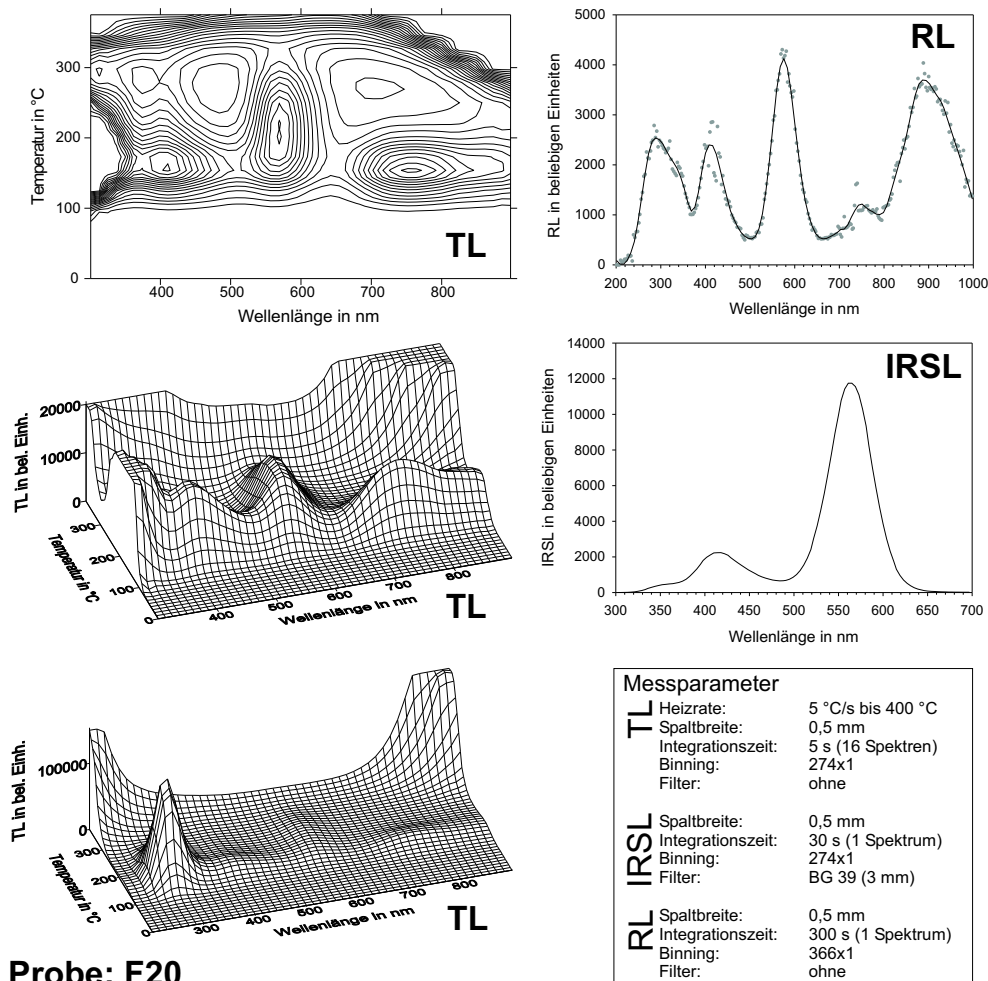
#### Überblick über die Methoden

Durch die Erweiterung des IRSL/TL-Lumineszenzspektrometers bietet sich nun in verstärktem Maße die Möglichkeit, durch Kombination verschiedener spektroskopischer Methoden Informationen über die Elektronenfallen und Rekombinationszentren der untersuchten Materialien zu erhalten.

*TL-Spektren* geben Informationen sowohl zur Fallen- als auch zur Zentrenverteilung. Die Rekombinationszentren können durch die unterschiedlichen Emissionen auf der Wellenlängenskala identifiziert werden. Die verschiedenen Energiedifferenzen zwischen Rekombinationszentren und Leitungsband führen zu den einzelnen Lumineszenzemissionen unterschiedlicher Wellenlänge. Die unterschiedlichen Peaks in Richtung der Temperaturachse eines TL-Spektrums geben hingegen Aufschluss über die Fallenverteilung im Material. Je höher die Stimulationstemperatur, umso tiefere Fallen können geleert werden. Somit werden auf der Temperaturachse mit steigender Temperatur Fallen mit größerer Energiedifferenz zwischen Falle und Leitungsband beprobt.

Im Idealfall wäre damit die TL-Spektroskopie ein universelles Werkzeug zur Bestimmung sowohl der Zentren- als auch der Fallenverteilung. Leider führt der Effekt des ‚Thermal Quenching‘ (Chen und McKeever, 1997) zu Einschränkungen im Informationsgehalt eines TL-Spektrums. Beim Thermal Quenching führt die Erhöhung der Stimulationstemperatur dazu, dass immer mehr Elektronen über nicht-strahlende Übergänge ihre Energie abgeben. Zusätzlich sind Emissionen mit höherer Energie (d.h. geringerer Wellenlänge) stärker betroffen als Emissionen mit niedriger Energie. Die Quantifizierung des Thermal Quenching

## 5.1. Basismessungen



Probe: F20

Abbildung 5.5.: Spektren der Probe F20.

bereitet nach wie vor große Schwierigkeiten; einen neuen Ansatz stellen Schilles et al. (2001) vor.

Aufgrund dieser Schwierigkeiten stellt die *RL-Spektroskopie* eine ideale Ergänzung zur oben Beschriebenen TL-Methode dar. Bei der Messung von RL-Spektren wird ständig eine große Anzahl von Elektronen ins Leitungsband angehoben, die dann in die Rekombinationszentren gelangen können. Durch dieses ständige ‚nachpumpen‘ wird der Einfluss der Elektronenfallen abgeschaltet, das RL-Spektrum zeigt somit ein Abbild der Rekombinationszentren.

Eine besondere Stellung nimmt die *IRSL-Spektroskopie* ein. Da die Effekte bei der IRSL immer noch nicht vollständig verstanden sind (siehe auch Kapitel 4.1.1), wird der Vergleich zwischen IRSL-Spektren und TL/RL-Spektren eingesetzt, um diese Vorgänge aufzuklären. So kann z.B. die Tatsache, dass im IRSL-Spektrum die relativen Intensitäten stark von denen im RL-Spektrum abweichen, Hinweise auf lokale Rekombinationen geben.

Durch die Kombination der Lumineszenzspektroskopie und anderen Verfahren

## 5. Grundlagenuntersuchungen

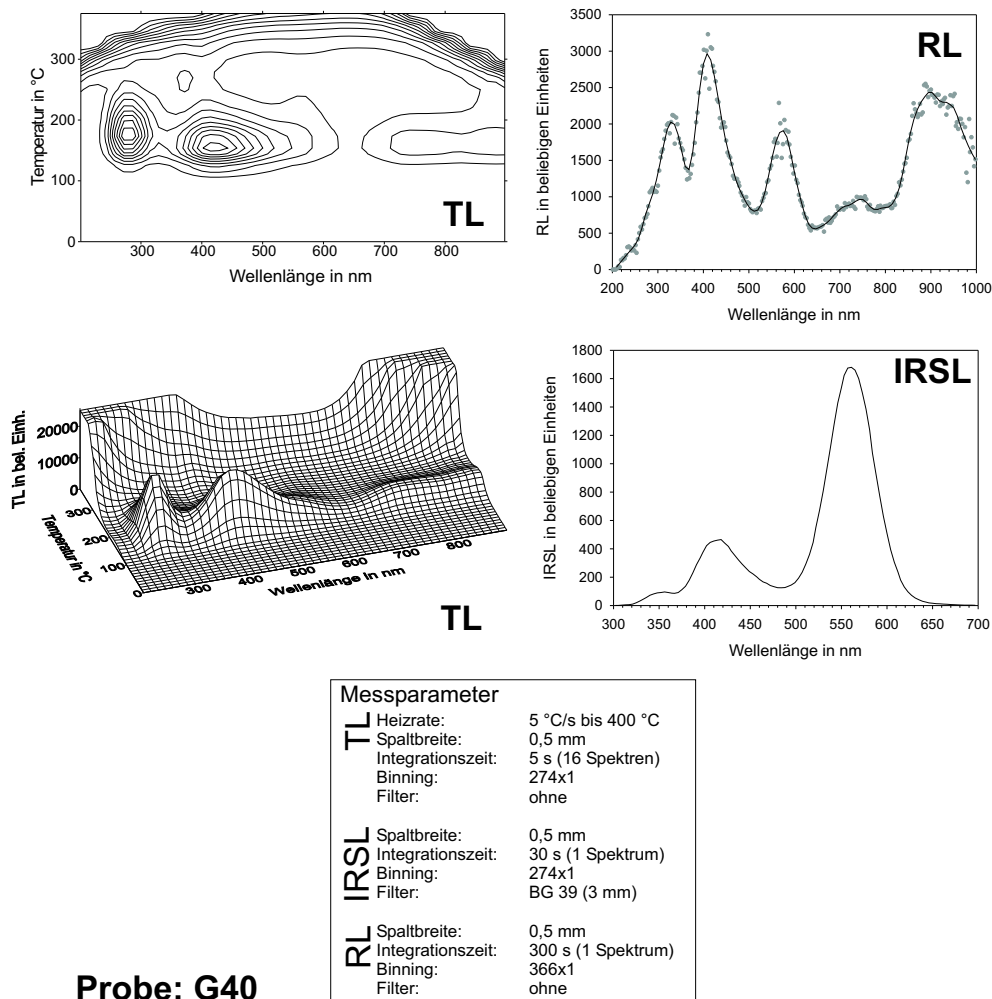


Abbildung 5.6.: Spektren der Probe G40.

können weitere wichtige Erkenntnisse gewonnen werden. Beispiele hierfür sind Anwendungen der ESR-Spektroskopie (Elektron-Spin-Resonanz) auf Quarzproben, die zusätzlich mit verschiedenen Lumineszenzverfahren untersucht wurden (Schilles et al. (2001), Woda et al. (2002)), zur Klärung von Korrelationen zwischen Lumineszenzsignalen und bestimmten Typen von Rekombinationszentren.

### Spektroskopische Messungen an den Felspatproben

Für die Proben G40, F20, NoPo, NoSo, IdCR1 und SldC1 wurden jeweils TL-, RL- und IRSL-Spektren bestimmt. Alle Messungen wurden am IRSL/TL/RL-Lumineszenzspektrometer (Kapitel 3.1) durchgeführt. Zum Einsatz kam ausschließlich ein Gitter mit  $150 \text{ Furchen mm}^{-1}$  und einer Blaze-Wellenlänge von 300 nm, das auf 700 nm zentriert war. Die Auswertungen wurden, wie in Anhang C beschrieben, durchgeführt. Die Darstellung der Daten erfolgte für die TL-Spektren mit der 3D-Software Surfer (Golden Software). Bei der Erstellung



des 3D-Datenrasters wird von diesem Programm eine Glättungsroutine auf die Rohdaten angewendet. In den Schaubildern ist für jede Probe ein Kontourplot zu sehen. In dieser Darstellung lässt sich die Lage der einzelnen Peaks gut ablesen. Zusätzlich findet sich in den Abbildungen eine 3D-Gitternetzdarstellung. Bei dieser Darstellung fällt die Beurteilung der Peakhöhen und deren Verhältnisse leichter. Teilweise wurden zwei solcher Gitternetzdarstellungen eingefügt (z.B. Abb. 5.5), um im Falle von einzelnen stark überhöhten Peaks in einer weiteren in z-Richtung gekappten Abbildung die anderen Peaks deutlich darzustellen. Die RL- und IRSL-Spektren wurden mit SigmaPlot 2000/2001 (siehe auch Schilles (2001)) von der Firma SPSS dargestellt. Dabei wurde für die RL-Spektren eine 2D-Glättungsprozedur auf die Daten angewendet. In den RL Schaubildern sind sowohl Rohdaten als auch geglättete Daten dargestellt. Die weiteren Messparameter sind in den jeweiligen Abbildungen aufgeführt.

In den Abbildungen 5.5 und 5.6 sind die Spektren für die Proben F20 und G40 dargestellt. Im TL-Spektrum der Probe F20 (reich an Na-Feldspat) ist eine deutliche gelbe Emission bei etwa 560 nm zu sehen. Diese Emission reicht auch bis in höhere Temperaturbereiche hinein. Weiterhin eine blaue Emission bei etwa 410 nm, eine rote bei ca. 750 nm und eine sehr starke UV Emission bei ca. 280 nm. Zusätzlich deutet sich eine Emission bei Wellenlängen oberhalb 800 nm an. Die relativen Peakhöhen sind im RL-Spektrum deutlich anders. Bis auf die rote Emission liegen alle Peaks in der selben Größenordnung. Deutlich zu sehen ist die IR-RL Emission bei etwa 900 nm. Bei der IRSL Messung zeigt sich hingegen ein gegenüber der blauen Emission deutlich dominierender gelber Peak. Dies könnte ein Hinweis auf eine lokale Rekombination zwischen IRSL-Falle und einem mit dieser Falle in Beziehung stehenden gelben Zentrum sein.

Zum Vergleich die Spektren der Probe G40 (reich an K-Feldspat) in Abbildung 5.6. Hier spielt die gelbe Emission eine untergeordnete Rolle, sie geht in der Schulter des blauen Peaks bei etwa 410 nm fast unter. Der UV Peak ragt hier nicht aus dem Spektrum, er liegt in der Höhe nahezu gleich mit dem blauen Peak, ein roter Peak ist schwach vorhanden, wiederum deutet sich eine Emission jenseits der 800 nm an. Im RL Spektrum zeigt sich eine ähnliche Situation wie bei der Probe F20, nur bildet bei der Probe G40 der blaue Peak die stärkste Emission, bei der Probe F20 ist dies der gelbe Peak. Überraschend deshalb das IRSL-Spektrum: es ist nahezu identisch mit dem Spektrum der Probe F20, der blaue Peak ist nur geringfügig stärker ausgeprägt.

Bereits mehrfach wurde der Versuch unternommen, eindeutige Verbindungen zwischen Feldspat-Mineralogie und Lumineszenz-Spektren aufzufinden (bei Rieser (1999) durch TL- und IRSL-Messungen, bei Trautmann (1999) durch RL-Messungen). Leider ließ sich bisher keine eindeutige Systematik finden. Dennoch scheint insbesondere der Ansatz mit Vergleichen zwischen TL-, IRSL- und RL-Spektren Einsichten in die Mechanismen der Lumineszenz von Feldspäten zu ermöglichen. Die starke Ausprägung der gelben Emission bei der IRSL der obigen Proben unabhängig von deren mineralogischen Unterschieden und der Konzentration an Rekombinationszentren (in den RL-Spektren zu sehen) ist ein Beispiel für diese vergleichende Methode. Das Verhalten könnte auf eine lokale Rekombination hindeuten, die vorrangig in Rekombinationszentren abläuft, die eine Emission im gelben Spektralbereich zeigen. Da die gelbe Emission bei der

## 5. Grundlagenuntersuchungen

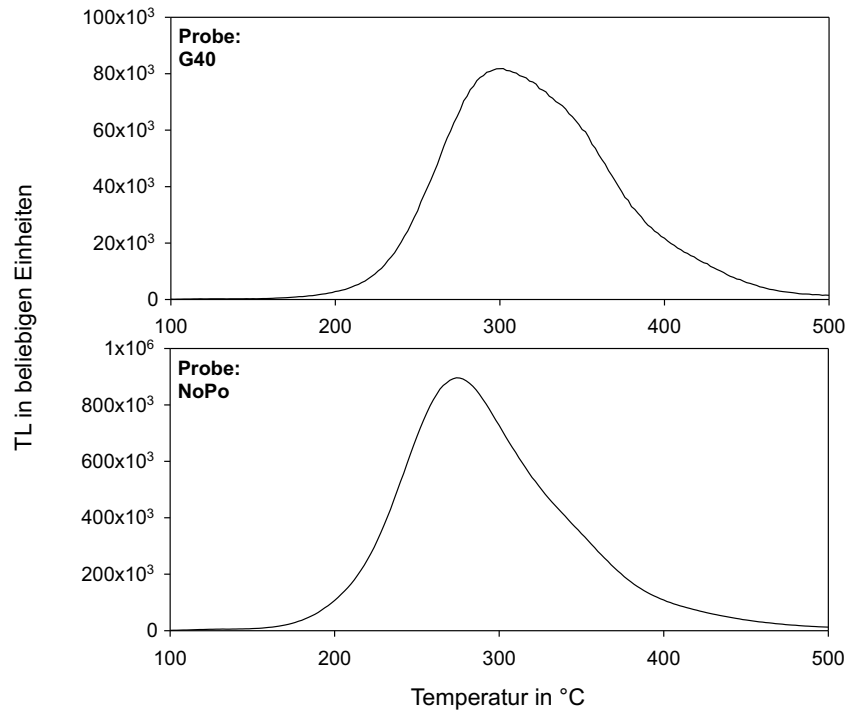


Abbildung 5.7.: **Messungen des natürlichen TL-Signals von Feldspäten.** Hier das natürliche Signal der Proben G40 und NoPo. Heizrate:  $5\text{ }^{\circ}\text{C s}^{-1}$  bis  $500^{\circ}\text{C}$ . Detektionsfilter: 3 Stück U 340 Glasfilter, je 2,5 mm, Hoya

IRSL im Vergleich zur blauen Emission bei den Proben F20 und G40 etwa das selbe Verhältnis zeigt, in den TL- und RL-Spektren das Verhältnis zwischen gelber und blauer Emission bei beiden Proben stark unterschiedlich ist, ist die Anzahl der lokalen gelben Rekombinationszentren offenbar unabhängig von der Gesamtzahl an gelben Rekombinationszentren. Dies könnte die These von Trautmann (1999) stützen, die von einer geringen Anzahl von lokalen Rekombinationszentren ausgeht, die für die IRSL verantwortlich ist (weitere Unterstützung für diese These liefern die Spektren der Probe SLdC1 (siehe Abb. D.4). Obwohl im RL Spektrum nahezu kein gelbes Signal erkennbar ist, zeigt das IRSL Spektrum eine ausgeprägte gelbe Emission).

### 5.1.4. TL-, IRSL-Messungen

Mit TL-Messungen können Aussagen über die Fallenverteilung gemacht werden. Durch die lineare Erhöhung der Temperatur während der Messungen werden nach und nach Fallen mit immer größerer Energiedifferenz zum Leitungsband geleert. In Abbildung 5.7 sind zwei Beispiele für Feldspat-TL Messungen zu sehen. Die Messungen wurden im Risø OSL/TL-DA-15 Messgerät durchgeführt. Die Temperatur wurde bis  $500\text{ }^{\circ}\text{C}$  mit einer Heizrate von  $5\text{ }^{\circ}\text{C s}^{-1}$  erhöht. Die Detektion erfolgte im UV-Spektralbereich (3 Stück U 340 Glasfilter, je 2,5 mm,

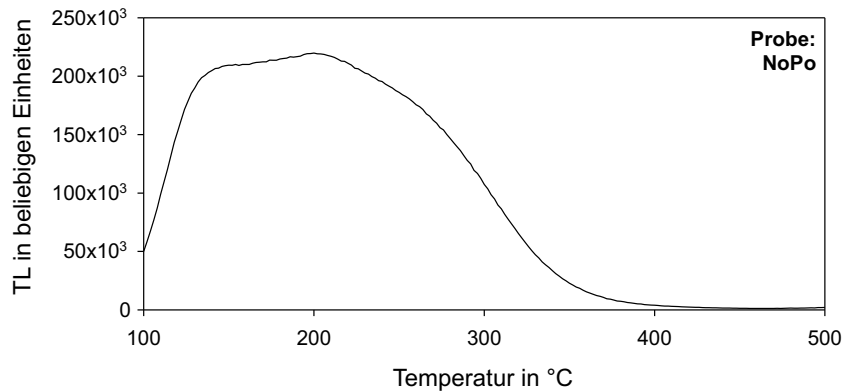


Abbildung 5.8.: **Messungen des TL-Signals von künstlich bestrahlten Feldspäten.** Hier für die Probe NoPo nach künstlicher Bestrahlung. Heizrate:  $5\text{ }^{\circ}\text{C s}^{-1}$  bis  $500^{\circ}\text{C}$ . Detektionsfilter: 3 Stück U 340 Glasfilter, je 2,5 mm, Hoya

Hoya). Das TL Signal zeigt einen breiten TL-Peak. Bei genauer Analyse der Daten zeigt sich jedoch, dass dieses Signal aus mehreren Fallen gespeist wird.

Die Abbildung 5.7 zeigt die TL der natürlichen Dosis. Im Gegensatz dazu zeigt Abbildung 5.8 die TL-Kurve unmittelbar nach künstlicher Bestrahlung. Deutlich zu sehen ist die Füllung der flachen Fallen, die bei natürlicher Bestrahlung bereits wieder zerfallen ist. Die Einflüsse dieser flachen Fallen könnten einen Erklärungsansatz für den ‚Einschaltvorgang‘ bei der IR-RL (Kapitel 5.1.1) liefern.

Alle Proben zeigen ein IRSL-Signal. Da aus den IRSL-Zerfallskurven für die hier durchgeführten Untersuchungen wenig Informationen entnommen werden können, wurden diese Messungen lediglich als Test für ein IRSL-Signal eingesetzt. Weitergehende Untersuchungen könnten mit der sogenannten linear modulierten IRSL durchgeführt werden (Bulur und Göksu, 1999). Dabei wird die Stimulationsleistung linear mit der Zeit erhöht. Durch diese Methode sollen Komponenten im IRSL-Signal mit unterschiedlicher Stabilität ermittelt werden. Eingesetzt wird diese Methode bisher vorwiegend an Quarzen (Bulur (1996), Schilles et al. (2001)).

## 5.2. Ortsaufgelöste Messungen

### 5.2.1. Ortsaufgelöste IR-RL Messungen

Im Rahmen des Projektes ‚Oberflächendatierung‘ wird von Herrn Dipl. Phys. Steffen Greilich an der Forschungsstelle Archäometrie ein Messgerät entwickelt, mit dem ortsaufgelöste Messungen der optisch stimulierten Lumineszenz möglich sind (Greilich und Wagner, 2002). Im Rahmen von ersten Tests wurden auch Versuche zur ortsaufgelösten Messung der Radiolumineszenz von Feldspäten durchgeführt. Mittels optischer Filter wurden die blaue (ca. 410 nm), die gelbe (ca. 560 nm) sowie die infrarote (ca. 900 nm) Emission selektiert. Gemessen wurden die Proben NoPo, NoSo, G40, F20, IdCR1 und SLdC1.

## 5. Grundlagenuntersuchungen

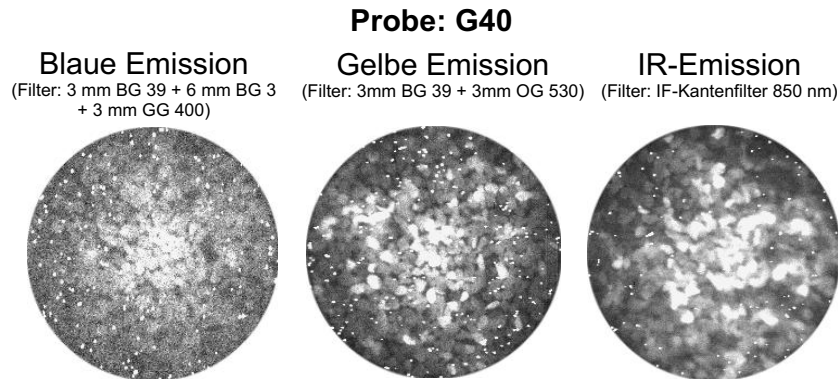


Abbildung 5.9.: **Ortsaufgelöste Messungen der Radiolumineszenz für die Probe G40.** Die drei Abbildungen zeigen die Radiolumineszenz in drei Emissionsbereichen. Die Aufnahme erfolgte mit einer CCD-Kamera bei einer Auflösung von  $22\ \mu\text{m}$  pro Pixel. Die weißen kleinen Punkte sind gesättigte Pixel durch kosmische Myonen oder Strahlung aus der Anregungsquelle.

Alle Proben zeigten in allen drei gemessenen Spektralbereichen ein Radiolumineszenzsignal, teilweise war das Signal, insbesondere im blauen Bereich, sehr schwach. Als Beispiel sind in Abbildung 5.9 die Ergebnisse der Messungen in den drei ausgewählten Spektralbereichen für die Probe G40 zu sehen.

Die geringen Signalintensitäten sind auf den starken Signalverlust bei der Messung zurückzuführen. Inzwischen steht das Messgerät in einer verbesserten Ausführung zur Verfügung (Greilich, pers. Mitteilung), so dass künftig deutlich aussagekräftigere Messungen durchgeführt werden können. Eine wichtige Anwendung solcher ortsaufgelösten Messungen sind Korrelationsversuche zwischen Elementgehalten und den unterschiedlichen Lumineszenzemissionen. Ein Beispiel für eine solche Anwendung ist in Abschnitt 5.2.3 dargestellt.

### 5.2.2. Messungen mit dem Rasterelektronenmikroskop

Nicht nur ortsaufgelöste Messungen der Lumineszenz sind von großem Interesse. Auch die örtliche Verteilung der Elementkonzentrationen in den Lumineszenzproben sind wichtige Informationen. Eine Möglichkeit, solche Messungen durchzuführen, sind Messgeräte, die sogenannte EDX-Analysen (Energie-Dispersive Röntgenfluoreszenz) erlauben. Bei diesen Geräten wird die Probe mit einem fokussierten Elektronenstrahl beschossen. Die dabei emittierte charakteristische Röntgenstrahlung wird spektral detektiert. Aus der Auswertung der Spektrallinien dieser Spektren lässt sich dann auf die Elementzusammensetzung der Probe schließen (Lage der Linien), sowie auf die Gehalte (Intensität der Linien). EDX-Geräte sind oft Zusatzeinrichtungen an Rasterelektronen-Mikroskopen (REM),

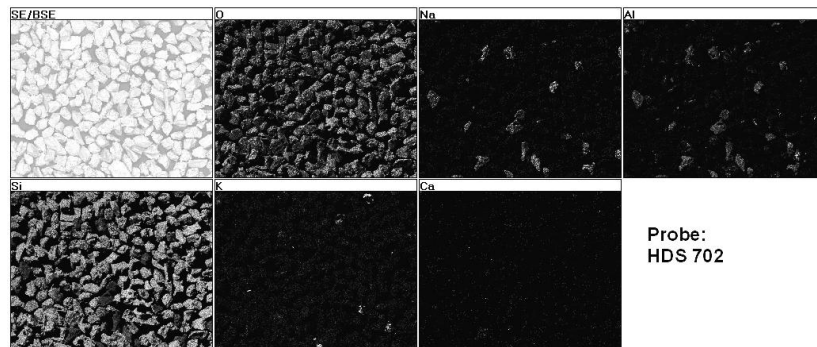


Abbildung 5.10.: **EDX-Elementscan der Probe HDS 702.** Links oben die Rasterelektronenmikroskopaufnahme. Die anderen Bilder stellen die Elementgehalte dar (von links oben nach rechts unten): Sauerstoff, Natrium, Aluminium, Silizium, Kalium, Calcium. Je heller eine Stelle in jeweiligen Bild, desto höher die relative Elementkonzentration. Obwohl die Probe HDS 702 bei der Probenaufbereitung einer Prozedur zur Separation von Kalifeldspäten unterzogen wurde, sind nahezu keine Kalifeldspäte erkennbar. Lediglich einzelne Natriumfeldspatkörner sind erkennbar.

da auch hier die Probe mit einem fokussierten Elektronenstrahl abgerastert wird<sup>1</sup>.

Mit dieser EDX-Analysetechnik wurden für die Feldspatproben Elementscans durchgeführt, mit denen die Elementverteilung qualitativ beurteilt werden kann. So ist beispielsweise die Überprüfung der Mineraltrennung bei der Probenaufbereitung einfach möglich. In Abbildung 5.10 ist als Beispiel eine Probe dargestellt, bei der die Prozedur zur Abtrennung der Kalifeldspäte offensichtlich nicht die gewünschte Wirkung erzielt hat. Solche Proben können mit der dargestellten EDX-Technik schnell identifiziert werden.

### 5.2.3. Korrelation der IR-RL mit Kalifeldspat

Mit den bei der EDX-Analyse gewonnenen Daten wurden erste Korrelationsversuche zwischen einzelnen Radiolumineszenzemissionen und den Mineralgehalten der Proben durchgeführt. Anhand der Probe F20 soll dies exemplarisch vorgeführt werden. In Abbildung 5.11 sind oben die Abbildungen der IR-RL Emission und daneben des EDX-Scans des Elements Kalium zu sehen. Vergleicht man die beiden Aufnahmen (zur Vereinfachung sind die beiden Abbildungen im unteren Bild überlagert), stellt man eine sehr deutliche Korrelation zwischen Kaliumgehalt und IR-RL Emission fest. Anzumerken sei hier, dass es bei der IR-RL Aufnahme zu Überstrahlungen innerhalb der Mineralkörner kommen kann, so dass kleine leuchtende Bereiche in der Abbildung wesentlich größer erscheinen.

<sup>1</sup>Im Gegensatz zur EDX-Analyse werden beim REM nicht die bei Beschuss mit Elektronen emittierten Photonen ausgewertet, sondern die aus der Probe ausgelösten Sekundärelektronen und Rückstreuelektronen.

## 5. Grundlagenuntersuchungen

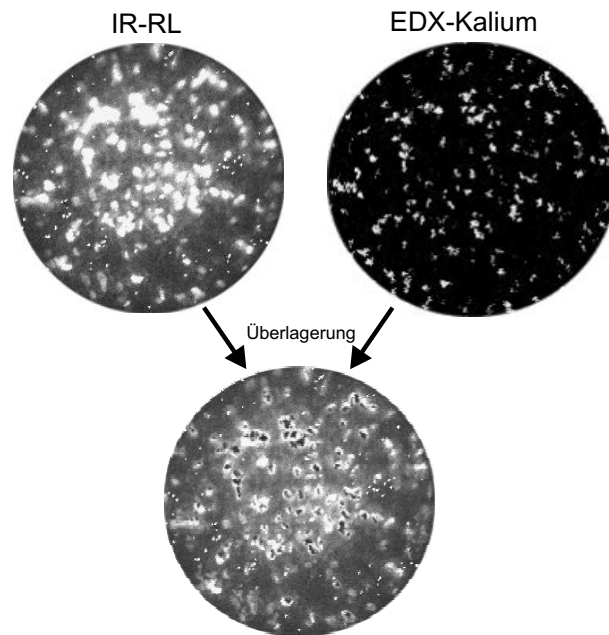


Abbildung 5.11.: **Ortsaufgelöste Messungen der IR-RL und des Kaliumgehaltes.** Hier für Probe F20. Die Überlagerung lässt eine Korrelation zwischen Kaliumgehalt und IR-RL Emission deutlich erkennen.

Diese bisher einzige Korrelation zwischen Kalium-Gehalt und der infraroten RL-Emission muss an weiteren Proben bestätigt werden. Leider waren mit den anderen im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben (s.o.) ähnlich deutliche Ergebnisse nicht zu erzielen. Die Gründe hierfür sind:

1. *Orientierung der Proben:* Die ortsaufgelösten RL-Messungen sowie die EDX-Messungen werden mit unterschiedlichen Messgeräten durchgeführt. Um die Ergebnisse vergleichen zu können, müssen die unterschiedlichen Positionen der Proben in dem jeweiligen Messgerät vor der Auswertung korrigiert werden<sup>2</sup>. Dies ist insbesondere bei kleinen Korngrößen sehr schwierig. Bei zukünftigen Messungen muss daher ein Probenhalter mit bei beiden Messmethoden eindeutig erkennbaren Positionsmarkierungen verwendet werden. Zusätzlich ist auf Proben mit nicht zu geringer Korngröße zu achten.
2. *Mineralgehalte:* Die meisten Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit wurden an Proben durchgeführt, die vor allem Kalifeldspäte enthalten. Durch das Überstrahlen in den Proben bei ortsaufgelösten Lumineszenzmessungen ist dabei eine Korrelation zu den EDX-Aufnahmen unmöglich,

---

<sup>2</sup>Bei den vorliegenden Messungen wurde dies über ‚Auflichtaufnahmen‘ (beim REM das Rückstreuелеlektronenbild) realisiert, die bei beiden Methoden vor der eigentlichen Messung erstellt wurden.

bzw. ohne Aussagekraft, da fast alle Bereiche der Probe ein IR-RL Signal zeigen. Für weitere Untersuchungen sollten daher Feldspatproben verwendet werden, die aus einem Feldspatgemisch mit einem niedrigen Anteil an Kalifeldspäten bestehen. Dies stellt möglicherweise einen Grund dar, warum die Probe F20 (24 % K-Feldspatanteil) verwertbare Ergebnisse liefert.

Die ersten Hinweise auf eine Korrelation zwischen Kalifeldspat und IR-RL-Emission ist aus zweierlei Gründen ein äußerst wichtiges Ergebnis: für die Grobkorndatierung bedeutet dies, dass tatsächlich nur die Kalifeldspäte zum IR-RL-Signal beitragen. Die Dosimetrie unter Berücksichtigung der internen Radioaktivität der Kalifeldspäte stellt damit die korrekte Methode dar. Einflüsse von Feldspäten ohne interne Radioaktivität und die damit verbundenen Unsicherheiten werden umgangen. Für eine Anwendbarkeit der IR-RL-Datierungsmethode auf polymineralische Feinkornproben stellt die beobachtete Korrelation eine wesentliche Vereinfachung dar. Es kann damit auch bei polymineralischen Proben angenommen werden, dass das IR-RL-Signal ausschließlich aus der Kalifeldspatfraktion stammt und damit Probleme durch Überlagerungen von Signalen unterschiedlicher Minerale vermieden werden (die Abwesenheit eines IR-RL-Signals bei Quarzen wurde bereits gezeigt).

## 5.3. Sensitivitätsänderungen

Um an einer Probe eine Dosis mit der IR-RL-Technik zu bestimmen, bedarf es mehrerer Messschritte. Dabei wird die Probe mehrfach gebleicht und bestrahlt (Kapitel 4.3). Bei jedem dieser Schritte können sich die Lumineszenzeigenschaften der Probe ändern. Dies äußert sich in einer veränderten Dosis-Lumineszenzcharakteristik. Diese Effekte werden als Sensitivitätsänderungen bezeichnet. Anhand von Abbildung 6.2 lässt sich abschätzen, dass bereits Sensitivitätsänderungen in der Größenordnung von wenigen Prozenten in einer erheblichen Änderung des Ergebnisses der Dosisbestimmung (etwa in der Größenordnung von zehn Prozenten) resultieren.

Die folgenden Untersuchungen zeigen, dass es in der Regel bei RL-Messungen zu Sensitivitätsänderungen kommt (Schilles und Habermann, 2000). Ein erster Ansatz zur Korrektur dieser Sensitivitätsänderungen wird in Kapitel 6.1 diskutiert.

### 5.3.1. Reproduzierbarkeitsmessungen

Um das Auftreten von Sensitivitätsänderungen zu untersuchen, wurden zunächst Reproduzierbarkeitstests durchgeführt. Dazu wurden die Proben G40, IdCR1 und SLdC1 zunächst 20 h mit Sonnenlicht oder für 10 h in einem Sonnenlichtsimulator (SOL2, Dr. Hönle) gebleicht und dadurch zurückgestellt. Anschließend wurde im RL-Messgerät eine IR-RL-Messung (Filter: IR 83, 2,5 mm) über einen Zeitraum von 24 h durchgeführt. Jede der Proben wurde zwei mal dieser Messabfolge unterzogen. Anschließend wurden an die Messdaten jeweils

## 5. Grundlagenuntersuchungen

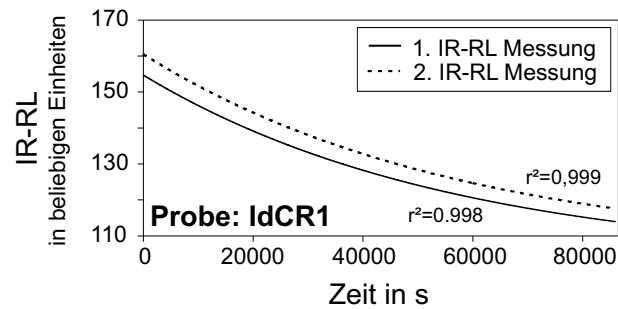


Abbildung 5.12.: **Reproduzierbarkeit der IR-RL-Wachstumskurve.** Hier für Probe IdCR1. Deutlich erkennbar die Auswirkungen der Sensitivitätsänderung. Die zweite Messung weicht deutlich von der ersten Messung ab, nach Abbildung 4.3 sollten beide Kurven deckungsgleich übereinander liegen.

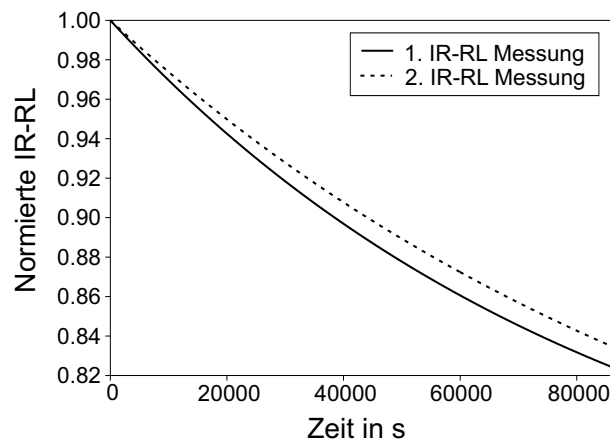


Abbildung 5.13.: **Sensitivitätsänderung bei wiederholter Messung.** Zur Verdeutlichung der Änderung des Zerfallsparmeters der Exponentialfunktion sind die normierten angepassten Funktionen der Messungen von Probe IdCR1 aufgetragen.

Tabelle 5.1.: **Ergebnisse der Experimente zur Sensitivitätsänderung.**

Probe	Bleichung	Abweichung des initialen Signals in %	95 %-Vertrauensintervall des Parameters $1/c$	
			1. Messung	2. Messung
SLdC1	Sonnenlicht	- 3,6	49107-49594	46629-47083
	SOL2	- 4,8	57244-58062	55064-55730
IdCR1	Sonnenlicht	+ 3,8	56063-56680	57393-57898
	SOL2	+ 8,9	57740-58666	61115-61944
G40	Sonnenlicht	+ 4,1	88278-88808	89519-89996
	SOL2	+ 5,3	85003-89183	111286-117647



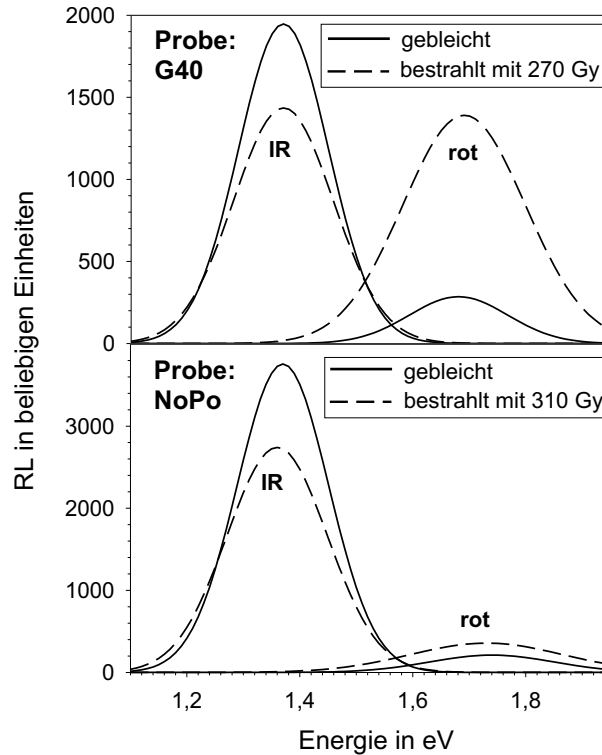


Abbildung 5.14.: **Verhalten der RL-Emissionen mit steigender Dosis.** An die gemessenen Spektren wurden hier jeweils zwei Gauß-Peaks angepasst.

exponentielle Zerfallsfunktionen (Gleichung 4.2) angepasst und die beiden IR-RL-Messkurven pro Probe miteinander verglichen. Die beiden Kurven zeigten in allen Fällen deutliche Abweichungen (Tabelle 5.1). Dabei lagen sowohl die initialen IR-RL-Signale um einige Prozent auseinander, als auch die Zerfallsparemeter  $c$  (Gleichung 4.2). Die Abweichung von  $c$  zwischen erster und zweiter Messung waren signifikant, so dass es sich um eine echte Sensitivitätsänderung handelt. Ein Beispiel ist in Abbildung 5.12 dargestellt. In dieser Abbildung sind die angepassten Funktionen für den ersten und zweiten Messzyklus von Probe IdCR1 zu sehen. Um die Änderung des Zerfallsparemters zu verdeutlichen, wurden diese Funktionen auf ihre Werte für  $t = 0$  normiert. Diese normierten Funktionen zeigt Abbildung 5.13. Es kam bei einer Probe (SLdC1) zu einer Abnahme der IR-RL im zweiten Messzyklus, die beiden anderen Proben zeigten eine Zunahme. Dieses Verhalten war reproduzierbar, insbesondere stimmten die Richtung der Abweichungen für die Sonnenlicht- und die SOL2-Bleichungen überein. Eine Zusammenfassung der Messergebnisse gibt Tabelle 5.1.

### 5.3.2. Dosisabhängigkeiten der RL-Emissionen

Nach Feststellung der Sensitivitätsänderungen wurden weitergehende Messungen durchgeführt (Schilles et al., 2002), um zu überprüfen, ob diese Änderungen

## 5. Grundlagenuntersuchungen

Tabelle 5.2.: Lage der Emissionen im roten und IR-Spektralbereich einiger Feldspäte.

Probe	<i>IR Emission</i>		
	Peakmaximum in eV	Peakmaximum in nm	Halbwertsbreite in eV
G40	1,37	905	0,08
NoPo	1,36	911	0,09
NoSo	1,36	911	0,16
SLdC1	1,40	886	0,17
IdCR1	1,38	898	0,16

Probe	<i>Rote Emission</i>		
	Peakmaximum in eV	Peakmaximum in nm	Halbwertsbreite in eV
G40	1,69	734	0,10
NoPo	1,73	717	0,11
NoSo	1,75	708	0,51
SLdC1	1,65	751	0,31
IdCR1	1,74	713	0,30

durch Messparameter oder Messgeräte mit verursacht werden. So wurde von Krbetschek et al. (2000) vermutet, die Sensitivitätsänderungen wären durch die Überlagerung der IR-RL- und der roten RL-Emission bedingt. Weitere Vermutungen betrafen die Reproduzierbarkeit der Sensitivität des Photomultipliers nach mehrfachem Aus- und Einschalten der Hochspannung (Erfurt, pers. Mitteilung). Die Stabilität des Photomultiplier-Detektorsystems wurde mit einem  $\beta$ -Licht überprüft. Dabei wurde die Hochspannung wiederholt aus- und eingeschaltet, dies auch über längere Zeiträume. Die Ergebnisse zeigten eine ausreichend gute Reproduzierbarkeit.

Um die Einflüsse der Überlagerung der roten und IR-Emission zu untersuchen, die bereits in Abbildung 3.7 deutlich erkennbar ist, waren umfangreiche Untersuchungen notwendig. Betrachtet man die Veränderung des Spektrums der Probe G40 (Abb. 5.14 oben) bei Bestrahlung, fällt die starke Zunahme der roten Emission bei 700 nm mit der Dosis auf. Dieses Verhalten ist insbesondere für die Planung der Experimente mit Einzelphotonenzählung von großer Wichtigkeit. Bei spektralen Messungen können die einzelnen Emissionen im Spektrum durch Anpassung von mehreren geeigneten Funktionen an die Messdaten getrennt werden. Bei der Einzelphotonenzählung muss die Trennung der Emissionen bereits vor dem Detektor durchgeführt werden, da der Detektor (in unserem Fall der Photomultiplier in der Betriebsart Einzelphotonenzählung) weder eine Orts- noch eine Energieinformation liefert. Eine Korrektur oder Zerlegung der Messdaten ist später nicht oder nur sehr begrenzt möglich.

Die Trennung der Emissionen erfolgt durch geeignete optische Filter. Zur

Auswahl der geeigneten Filter(kombinationen) müssen die Lage und Breite der einzelnen Emissionen bekannt sein. Für fünf Proben (G40, NoPo, NoSo, SLdC1, IdCR1) wurden deshalb diese Parameter bestimmt. An die gemessenen Spektren wurden dazu an die rote und die IR-Emission jeweils eine Gauß-Kurve angepasst (in Energiedarstellung). Die Parameter der angepassten Gauß-Kurven sind in Tabelle 5.2 zusammengestellt. Aus den angegebenen Daten wird deutlich, dass die IR-Emission im Bereich um ca. 900 nm liegt und damit weiter im IR-Bereich als bisher von Trautmann et al. (1999) angegeben. Je weiter die IR-RL Emission vom Resonanzmaximum der IRSL Stimulation (bei etwa 860-880 nm) entfernt liegt, desto unwahrscheinlicher wird auch eine direkte Korrelation beider Effekte. Die Daten der roten Emissionen zeigen, dass zum Teil recht breite rote Emissionspeaks auftreten, die zu starken Überlappungen mit der IR-Emission führen.

Transformiert man das Spektrum der Probe G40 in die Energiedarstellung und passt jeweils eine Gaußkurve an die rote und die IR-Emission an, wird deutlich, dass es einen breiten Überlappungsbereich der beiden Emissionen gibt (Abb. 5.14). Beachtet man weiterhin die Tatsache, dass die Detektionscharakteristik des Photomultipliers auf den Bereich bis 930 nm (1,33 eV) beschränkt ist, wird klar, dass eine vollständige Trennung der roten und IR-Emission bei Feldspäten nur sehr schwer oder gar nicht möglich ist. Die Stärke der Überlappung ist jedoch von der jeweiligen Probe abhängig. Bei der Probe NoPo ist der Einfluss des Überlappens bei weitem nicht so groß wie bei Probe G40 (Abb. 5.14).

#### 5.3.3. Verhalten des roten Peaks

Eine wichtige Frage zur Beurteilung der Beeinflussung der Ergebnisse durch die rote Emission ist die Frage nach dem Dosisverhalten der roten Emission. Trautmann et al. (1998) berichten von einer Instabilität des roten Peaks. Bereits nach fünf Minuten Lagerung ohne Stimulation und anschließender RL-Messung soll der Peak zerfallen. Daraus schließen Krbetschek et al. (2000) auf einen unkalkulierbaren Einfluss des roten Signals auf die Messung. Entscheidend ist daher, ob der rote Peak ein reproduzierbares Verhalten zeigt. In einem solchen Fall wäre der Einfluss des roten Peaks auf die IR-RL-Reproduzierbarkeitsmessungen in beiden Messzyklen derselbe und könnte somit keinen Grund für die beobachteten Änderungen darstellen.

Um diese Frage zu beantworten, wurden Reproduzierbarkeitsmessungen für die rote Emission durchgeführt. Dazu wurde das RL-Messgerät mit einem Bandpass-Interferenzfilter (700FS10, Andover) mit einer zentralen Wellenlänge von 700 nm bei einer Halbwertsbreite von 10 nm ausgestattet. Abbildung 3.7 zeigt, dass bei etwa 700 nm (1,77 eV) nahezu ausschließlich der rote Peak detektiert wird, Überlappungen mit anderen Emissionen reichen nicht bis zu dieser Wellenlänge. Die Proben wurden 1 h mit der eingebauten Hg-Xenon-Lampe (Filter WG 225, 3 mm, Schott) gebleicht, anschließend wurde für 20 h die rote RL gemessen. Dieses Protokoll wurde zwei mal durchlaufen. Die beiden geglätteten RL-Kurven der roten Emission sind für Probe G40 in Abbildung 5.15 aufgetra-

## 5. Grundlagenuntersuchungen

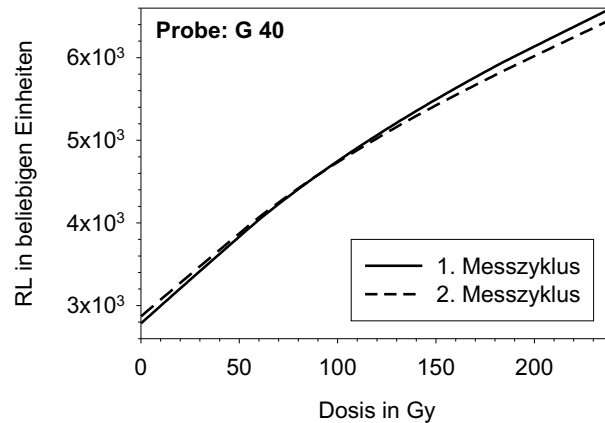


Abbildung 5.15.: Verhalten des roten Peaks.

gen (die Ergebnisse für zwei weitere Proben sind in Anhang D.2 zu finden). Die beiden Kurven stimmen bis auf geringe Abweichungen überein.

Da der Anteil des roten Signals am detektierten Signal bei IR-RL Messungen je nach verwendetem Filter im unteren Prozentbereich liegt (Abbildung 5.17), können die geringen Abweichungen in der Reproduzierbarkeit der roten Emission nicht die Sensitivitätsänderungen im IR-RL Signal erklären. Deutlich wird dies auch am Beispiel der Probe G40. Bei der zweiten Messung zeigte der rote Peak hier zu Messbeginn eine Überschätzung im Vergleich zur ersten Messung. Nach der Hälfte der Messzeit kehrt sich das Verhältnis um. Im Vergleich zur ersten Messung zeigte die IR-RL-Messung jedoch über die ganze Messdauer hinweg eine Überschätzung gegenüber der zweiten Messung. Beachtet werden sollte die Tatsache, dass während der gesamten Messung, d.h. auch während der Bleichung, die Probe durch die Quelle bestrahlt wurde. Bei Messgeräten, bei denen die Probe während des Bleichens von der Quelle entfernt wird, zeigt der instabile rote Peak möglicherweise ein anderes Verhalten.

### 5.3.4. Filterempfehlungen

Bei der Auswahl der Filter muss nach den Ergebnissen des vorhergehenden Abschnittes nicht auf eine absolute Unterdrückung der roten Emission geachtet werden. Für bestimmte Proben ist dies mit den vorliegenden Messgeräten zudem nicht möglich. Eine starke Unterdrückung des roten Signals sollte zwar angestrebt werden, die totale Detektionseffizienz darf - insbesondere bei schwachen Proben, wie etwa Feinkorn-Präparaten - aber nicht zu sehr reduziert werden.

Auf Basis der Abbildung 5.14 wurden Berechnungen durchgeführt, um eine Abschätzung des Einflusses der roten Emission bei der IR-RL-Detektion zu erhalten. Zunächst wurde dafür die Detektionseffizienz für unterschiedliche Filterkombinationen in Verbindung mit dem verwendeten Photomultiplier nach Herstellerdaten berechnet. Für die verschiedenen Kombinationen wurde dann der Anteil der roten Emission am transmittierten Signal berechnet, ausgehend von den beiden Fällen der Proben NoPo und G40. Zusätzlich wurde das Inte-

### 5.3. Sensitivitätsänderungen

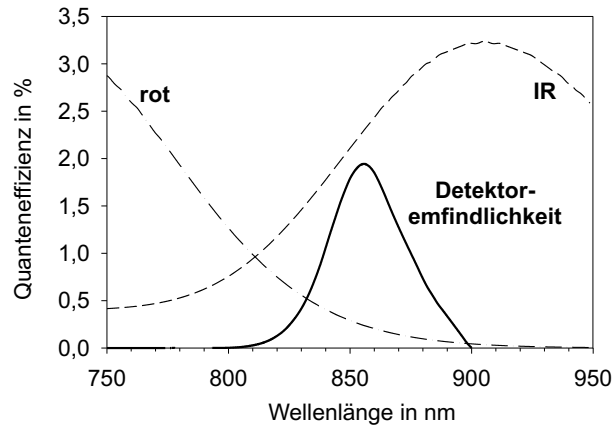


Abbildung 5.16.: **Detektion mit empfohlener Filterkombination.** Gestrichelt eingezeichnet die Emissionen der Probe G40 bestrahlt mit 270 Gy (aus Abb. 5.14).

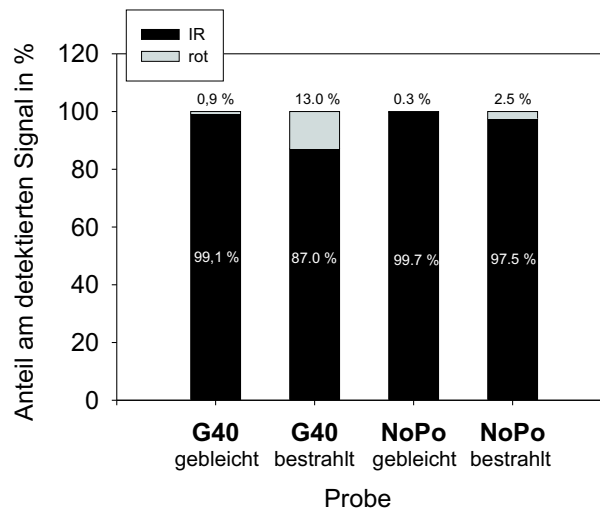


Abbildung 5.17.: **Beispiel für den Einfluss der roten Emission.** Berechnet auf Basis der Abbildung 5.14 unter Verwendung der Detektionsempfindlichkeit aus Abbildung 5.16.

## 5. Grundlagenuntersuchungen

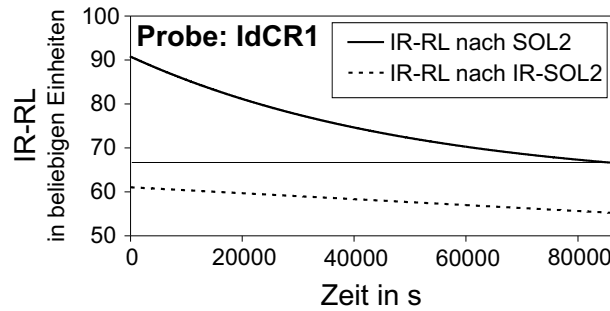


Abbildung 5.18.: **IR-Bleichen der IR-RL von Probe IdCR1.** Die waagrechte Linie dient als Hilfslinie. Im Falle einer vollständigen Bleichung müsste die zweite Messung (gestrichelt) deckungsgleich mit der ersten Messung (durchgezogen) liegen.

gral über die Detektionseffizienzkurve berechnet, um dies bei der Beurteilung der einzelnen Filter zu berücksichtigen. Ein geringes Integral bedeutet dabei eine geringe totale Detektionseffizienz und somit auch eine geringe Signalstärke. Da in der Zählstatistik der Zählfehler direkt (für die Zählstatistik über die Beziehung  $\sqrt{n}$ ) mit der Anzahl der Ereignisse korreliert ist, ergibt sich in diesem Fall ein höherer relativer Zählfehler als bei einer Filterkombination mit hohem Integral. Als Kompromiss zwischen guter Unterdrückung der roten Emission und hoher Detektionseffizienz wurde die Filterkombination bestehend aus IR 83 (2,5 mm, Hoya) und Interferenz-Hochpass-Kantenfilter mit einer 50 % Wellenlänge von 850 nm (850FH90, Andover) ausgewählt. Die Detektionscharakteristik der Filter in Kombination mit dem PMT ist in Abbildung 5.16 dargestellt.

Für diese Filterkombination wurden die Anteile der roten und IR-Emission am detektierten Signal auf Basis der Spektren in Abbildung 5.14 berechnet. Das Ergebnis zeigt Abb. 5.17.

### 5.4. Bleichbarkeit der IR-RL

Verschiedene Bleichtests der IR-RL-Emission wurden durchgeführt, um unterschiedliche Effekte zu untersuchen. Mit den Tests der IR-Bleichung wurden vor allem Modellannahmen überprüft. Bei der Auswahl der Bleichmethode für Datierungsmessungen kommt es vor allem auf eine zuverlässige, vollständige Bleichung der Proben an. Beim Vergleich des Bleichverhaltens des IR-RL- und des IRSL-Signals sind die jeweiligen Bleichgeschwindigkeiten von Interesse. Bei Abweichung könnten auch Abweichungen in Datierungsergebnissen durch die unterschiedlich schnelle Rückstellung des Datierungssignals erklärt werden.

#### IR-Bleichen

In Kapitel 4.4 wurde bereits dargestellt, dass IR-Strahlung keine Bleichwirkung auf die IR-RL besitzt, obwohl dies nach dem einfachen Modell zu erwarten wäre. Um die Bleichwirkung von IR-Strahlung zu testen, wurden die Proben

SLdC1, IdCR1, G40 zunächst durch 10 h Bleichung im Sonnenlichtsimulator SOL2 vollständig zurückgesetzt. Anschließend wurde für 24 h die IR-RL aufgenommen. Nach der Messung wurden die Probe erneut unter der SOL2 Lampe für 10 h gebleicht, bei dieser zweiten Bleichung jedoch mit einem IR-Hochpass-Glasfilter (RG 850, 3 mm, Schott) zwischen Probe und Lampe. Dieser Filter besitzt eine Transmission bei Wellenlängen über 800 nm. Nach dieser Bleichung wurde erneut die IR-RL für 24 h gemessen. Das Ergebnis für Probe IdCR1 ist in Abbildung 5.18 dargestellt. Alle anderen untersuchten Proben zeigten ein ähnliches Verhalten. Es konnte keine Bleichwirkung von IR-Strahlung auf die IR-RL-Emission nachgewiesen werden. Untersuchungen von Trautmann (1999) bestätigen diese Ergebnisse.

#### Wahl der Methode zur Bleichung im Labor

Weiterführende Untersuchungen von Trautmann et al. (2000) zeigten die Bleichbarkeit der IR-RL erst bei Wellenlängen unterhalb von ca. 500 nm. Bei Tests mit einer Halogen-Lampe als Bleicheinrichtung für das RL-Messgerät zeigte sich weiterhin, dass für eine schnelle und vollständige Bleichung das Spektrum von Halogen-Lampen nicht geeignet ist. Das Spektrum von Halogen-Lampen beginnt bei etwa 300 nm. Der effektiv bleichende Spektralbereich von 300-500 nm ist offensichtlich zu schmalbandig, um alle Fallen verlässlich zu leeren. Um tiefe Fallen effektiv zu leeren, muss daher zur Bleichung auch das nahe UV eingesetzt werden. Aus diesem Grund fiel die Wahl der Bleicheinrichtung auf eine 200 W Hg-Xenon-Bogenlampe, bei der der UV-Bereich durch einen Glasfilter (WG 225, 3 mm, Schott) nach unten auf etwa 200 nm begrenzt wurde. Bleichtests mit dieser Lampe (in der in Kapitel 3.2 beschriebenen Anordnung) zeigten, dass eine Bleichdauer von 1 h in allen Fällen ausreichend ist. Untersuchungen von Krbeschek et al. (2000) mit einer 200 W Hg-Lampe und einem KG 5 Hitzeschutzfilter (Schott) zeigten eine vollständige IR-RL-Signalarückstellung innerhalb weniger Minuten und bestätigten somit die gewählten Parameter. Zusätzlich wurde bei den Datierungsmessungen nach der Bleichung eine Pause von 0,5 h eingehalten, um die Detektion von ‚Einschaltvorgängen‘ zu vermeiden.

##### 5.4.1. Vergleich der Bleichung von IR-RL und IRSL

Um die Bleichgeschwindigkeit der IR-RL mit der der IRSL zu vergleichen, wurde mit der Probe NoPo ein Parallelexperiment durchgeführt. 48 Scheibchen dieser Probe wurden angefertigt und mit einer  $\beta$ -Dosis von etwa 115 Gy bestrahlt. Anschließend wurden die Scheibchen in 2 Teilproben zu je 24 Scheibchen aufgeteilt. In der ersten Gruppe wurde jedes Scheibchen einer IRSL-Kurzzeitmessung (Vorheizen für 10 s bei 220 °C, Messung für 0,5 s, bei 40 % IR-Laserleistung) im Risø OSL/TL-DA-15 Messgerät unterzogen. In der zweiten Gruppe wurde an jedem Scheibchen eine Messung der IR-RL mit dem Messgerät mit Röntgenstimulation durchgeführt (45 kV, 4 mA, Detektionsfilter IR 83, 2,5 mm + IF 850 nm, Messdauer 40 s).

Die Scheibchen wurden anschließend mit Sonnenlicht gebleicht. Dabei wurden die Teilproben weiter unterteilt und für 0, 1, 5, 10, 15, 20, 30, 40 und 60 Minuten

## 5. Grundlagenuntersuchungen

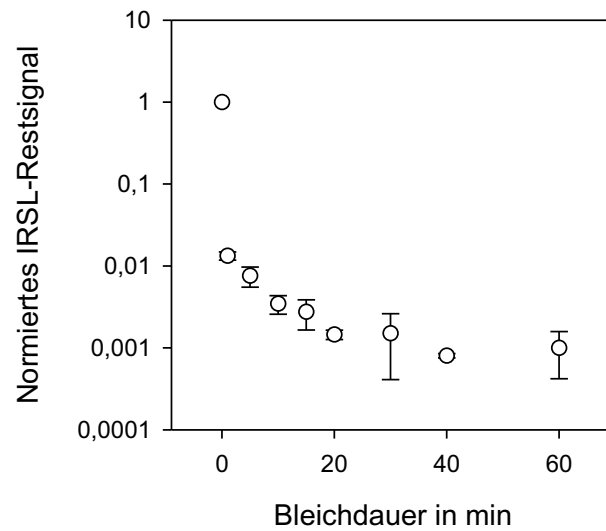


Abbildung 5.19.: **Bleichgeschwindigkeit der IRSL.** Das jeweilige Signal nach der Bleichung wurde auf das Signal vor der Bleichung normiert.

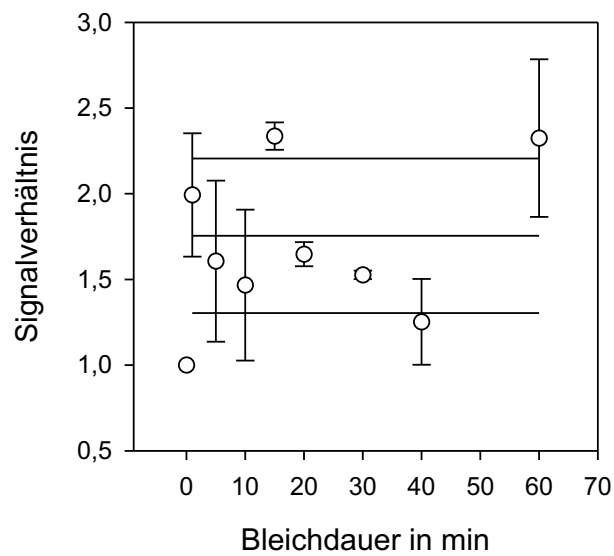


Abbildung 5.20.: **Bleichgeschwindigkeit der RL.** Die waagerechte Linie (mit Fehlergrenzen) markiert den Bereich, in dem das Signalverhältnis zwischen gebleichtem und gesättigtem Signal der Probe NoPo üblicherweise liegt.



### 5.5. Temperaturabhängigkeit der IR-RL

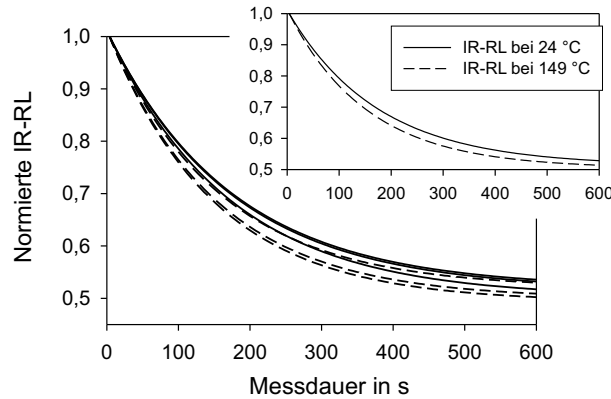


Abbildung 5.21.: **Temperaturabhängigkeit der RL.** Die schwarzen Graphen zeigen den Verlauf der normierten IR-RL bei Raumtemperatur, die gestrichelten Graphen die IR-RL bei etwa 149 °C. Im großen Schaubild jeweils für drei Scheibchen pro Temperatur, im kleinen Diagramm das Mittel aus drei Scheibchen pro Temperatur.

dem Sonnenlicht ausgesetzt. Die Scheibchen mit 0 min Bleichung wurden zur Normierung eingesetzt (zum Ausgleich von Schwankung in den Messbedingungen). Nach der Bleichung wurden in der jeweiligen Teilgruppe wiederum IRSL- bzw. IR-RL-Messungen an den Scheibchen durchgeführt.

Zur Auswertung wurden die Quotienten der Messung vor und nach der Bleichung gebildet, nachdem die Normierung eingerechnet worden war. Die Ergebnisse sind in den Abbildungen 5.19 und 5.20 gezeigt. Bei der IRSL-Bleichung ist das Signal bereits nach 1 min auf etwa 1 % zurückgegangen, so dass bei der IRSL von einer vollständigen Rückstellung bereits nach wenigen Minuten Sonnenbestrahlung ausgegangen werden kann. Die vorliegende Probe zeigt damit ein für Feldspäte typisches IRSL-Bleichverhalten (Godfrey-Smith et al., 1988).

Schwieriger ist die Bewertung der Ergebnisse im Fall der IR-RL Bleichung. Der dynamische Bereich einer IR-RL-Messung ist viel geringer als der einer IRSL-Messung. Bei der IR-RL-Messung liegt das Verhältnis von maximalem und minimalem Signal in etwa in der Größenordnung von 2, da der Grenzwert des Signals für hohe Dosen bei etwa 50 % des Anfangssignals der gebleichten Probe liegt. Bei IRSL-Messungen liegt das Signal einer hoch bestrahlten Probe problemlos um den Faktor  $10^5$  über dem Untergrund einer gebleichten Probe. Daher sind die Ergebnisse des Bleichversuchs der IR-RL mit stärkerer Streuung und höheren Fehlern belegt, als die der IRSL Messung. Dennoch kann man der Abbildung entnehmen, dass bereits nach 1 min Bleichung keine systematische Änderung im IR-RL-Signal zu beobachten ist. Man kann also auch hier davon ausgehen, dass bereits innerhalb von wenigen Minuten das IR-RL-Signal durch Sonnenlicht gelöscht wird.

## 5.5. Temperaturabhängigkeit der IR-RL

In einem weiteren Experiment wurde die Abhängigkeit der IR-RL von der Proben-temperatur ermittelt. Dazu wurden von der Probe NoPo sechs Scheibchen angefertigt und für 1 h im Sonnenlichtsimulator SOL2 gebleicht. Die Scheibchen wurden dann in zwei Gruppen unterteilt. Von den drei Scheibchen der Gruppe 1 wurde das IR-RL Signal über 600 s mit dem RL-Messgerät mit Röntgenstimulation (45 kV, 45 mA, Filter: IR 83, 2,5 mm + IF 850 nm) bei einer Proben-temperatur von ca. 24 °C (Raumtemperatur) bestimmt. Mit den Scheibchen der Gruppe 2 wurde die selbe Messung durchgeführt, jedoch bei einer Proben-temperatur von ca. 149 °C, die durch das Peltierelement im Probenhalter eingestellt wurde.

Zur Auswertung wurde der Untergrund subtrahiert, exponentielle Zerfallsfunktionen an die Daten angepasst und diese Funktion normiert. In Abbildung 5.21 sind die Ergebnisse der einzelnen Scheibchen sowie des Mittels pro Temperaturgruppe dargestellt. Insgesamt lässt sich eine leichte Veränderung der IR-RL mit erhöhter Temperatur feststellen. Die Abnahme der IR-RL erfolgt bei erhöhter Temperatur etwas schneller. Eine Änderung des Grenzwertes des IR-RL-Signals für hohe Dosen lässt sich aus diesem Diagramm nicht mit Sicherheit ablesen. Dies bedeutet, dass der Mechanismus, der zur kontinuierlichen Leerung der IR-RL-Falle führt und das IR-RL-Signal für hohe Dosen nicht gegen Null streben lässt, offensichtlich nicht temperaturabhängig ist. McKeever (1985) beschreibt den von Trautmann (1999) vorgeschlagenen Mechanismus der Schön-Klasens-Kinetik zur Erklärung der Fallenleerung bei der IR-RL als einen temperaturabhängigen Prozess. Aufgrund der vorliegenden Messergebnisse muss der Erklärungsansatz neu überdacht und durch weitere Messungen, auch in höheren Temperaturbereichen, untersucht werden. Durch die vorliegenden Messungen lässt bereits sich eine geringe Temperaturempfindlichkeit der IR-RL feststellen. Geringe Schwankungen der Temperatur während der Langzeitmessungen sollten daher nicht zu Problemen führen.

## 6. Datierungsmessungen

### 6.1. Korrektur der Sensitivitätsänderung

In Kapitel 5.3 wurden die Effekte der Sensitivitätsänderungen bei wiederholten RL-Messungen beschrieben. Da diese zu starken Abweichungen in den Datierungsergebnissen führen können, wird in den folgenden Abschnitten ein erster Ansatz zur Korrektur dieser Sensitivitätsänderungen beschrieben.

#### 6.1.1. Berechnung der Äquivalenzdosis

Ausgehend von den in Kapitel 4.3 vorgestellten Methoden zur Äquivalenzdosisbestimmung lässt sich die Äquivalenzdosis  $D_E$  errechnen. An die Meßdaten werden zunächst einfach exponentielle Zerfallsfunktionen mit drei Parametern angepasst. Für die Messung der natürlichen Probe:

$$y_0 = a_0 + b_0 \exp(-c_0 x) \quad (6.1)$$

Sowie für die gebleichte Probe:

$$y_1 = a_1 + b_1 \exp(-c_1 x) \quad (6.2)$$

Die Variable  $x$  steht hier für applizierte Dosis oder Messdauer<sup>1</sup>. Des Weiteren sei die Sensitivitätskorrektur  $s$  gegeben (die Bestimmung von  $s$  mit verschiedenen Methoden erfolgt in den folgenden Abschnitten). Die gebleichte Kurve wird mit  $s$  multipliziert, um die Sensitivitätsänderungen, verursacht durch den Messzyklus, auszugleichen. Somit errechnet sich die  $D_E$  nach der *regenerativen* Methode:

$$D_{E_{\text{reg}}} = -\frac{\ln(((a_0 + b_0)/s - a_1)/b_1)}{c_1} \quad (6.3)$$

Die  $D_E$  nach der *additiven* Methode ergibt sich nach:

$$D_{E_{\text{add}}} = \frac{\ln(((a_1 + b_1) \cdot s - a_0)/b_0)}{c_0} \quad (6.4)$$

Im Idealfall, d.h. wenn keine Sensitivitätsänderungen auftreten oder deren Korrektur vollständig möglich ist, sollten die beiden Äquivalenzdosen übereinstimmen:

$$D_{E_{\text{reg}}} = D_{E_{\text{add}}} \quad (6.5)$$

---

<sup>1</sup>Dosis und Messdauer sind bei der Radiolumineszenz über die Dosisleistung der Anregungsquelle proportional verknüpft

## 6. Datierungsmessungen

Somit stellt die Abweichung zwischen den Äquivalenzdosen ein Maß für die Güte der Sensitivitätskorrektur dar und lässt eine Abschätzung des Fehlers der Äquivalenzdosis zu. Die im weiteren verwendete Abweichung (in %) ist wie folgt definiert:

$$\Delta_D = \frac{|D_{E_{\text{add}}} - D_{E_{\text{reg}}}|}{D_{E_{\text{add}}}} \cdot 100 \quad (6.6)$$

### 6.1.2. Bestimmung der Sensitivitätskorrektur mittels Korrekturscheibchen

Bei diesem Verfahren werden zusätzlich zu den Probenscheibchen zur  $D_E$  Bestimmung ein bis mehrere Scheibchen, die zur Korrektur der auftretenden Sensitivitätsänderungen dienen, der IR-RL Messungen unterzogen. Diese Scheibchen werden im Gegensatz zu den Scheibchen zur Dosisbestimmung auch vor der ersten Messung gebleicht. Somit werden an diesen Scheibchen zwei mal hintereinander Messungen im gebleichten Zustand durchgeführt, Abweichungen zwischen der ersten und der zweiten Messung sind auf Sensitivitätsänderungen zurückzuführen. Voraussetzung für diese Methode ist die Annahme, dass durch die Bleichung vor der ersten Messung keine Sensitivitätsänderungen erzeugt werden.

Die Sensitivitätsänderung  $s$  wird aus den Messdaten wie folgt bestimmt:

- Anpassung von einfach exponentiellen Funktionen an die Daten der ersten und zweiten Messung:

$$y_{c0} = a_{c0} + b_{c0} \exp(-c_{c0}x) \quad (6.7)$$

für die erste Messung der gebleichten Testscheibchen. Sowie:

$$y_{c1} = a_{c1} + b_{c1} \exp(-c_{c1}x) \quad (6.8)$$

für die zweite Messung der erneut gebleichten Testscheibchen.

- Aus diesen angepassten Funktionen wird  $s$  durch Quotientenbildung bestimmt:

$$s(x) = \frac{y_{c0}(x)}{y_{c1}(x)} \quad (6.9)$$

In der Regel ist  $s(x) \neq \text{const.}$ , sondern leicht von der Dosis abhängig. In diesen Fällen wird  $s$  als Mittelwert über den entsprechenden Dosisbereich der Messung berechnet.

Die Annahme, dass es sich bei  $s$  um einen multiplikativen und nicht um einen additiven Faktor handelt, resultiert aus den Messungen von Änderungen der Krümmungen der Exponentialfunktionen, die durch einen additiven Faktor nicht beeinflusst werden können. Schließlich scheint die Annahme, dass die Sensitivitätsänderungen unabhängig von der Höhe des IR-RL Signals (und damit von der Dosis) sind, unwahrscheinlicher als die Annahme, das IR-RL Signal ändert sich prozentual durch die Sensitivitätsänderungen. Dieses Verfahren wird im Folgenden als Verfahren 1 bezeichnet.

### 6.1.3. Bestimmung der Sensitivitätskorrektur aus den angepassten Funktionen

Ein weiterer Ansatz, um den Faktor  $s$  zu bestimmen, ist die Berechnung aus den Messdaten des Scheibchens zur Dosisbestimmung selbst. Aus den Gleichungen 6.1 und 6.2 folgt:

$$y_0 = a_0 \text{ für } x \rightarrow \infty \quad (6.10)$$

$$y_1 = a_1 \text{ für } x \rightarrow \infty \quad (6.11)$$

Ohne Sensitivitätsänderungen sollte  $a_0 = a_1$  sein. Damit ergibt sich die Sensitivitätskorrektur aus:

$$s = \frac{a_0}{a_1} \quad (6.12)$$

Das Problem dieser Methode liegt in der Anpassung der Funktion an die Messdaten. Die exakte Bestimmung der Werte für  $a_0$  und  $a_1$  gelingt nur bei Messungen bis in hohe Dosisbereiche. Für kürzere Messungen liegt in der Bestimmung dieser Sättigungswerte eine große Unsicherheit, die sich auf  $s$  überträgt. Da die Äquivalenzdosis sehr empfindlich auf  $s$  reagiert, besitzt diese Methode eine höhere Unsicherheit, als die Methode mit Korrekturscheibchen. Allerdings ist die hier beschriebene Methode für Proben mit sehr geringem Probenvolumen eine mögliche Alternative. Dann sollten allerdings die Messbereiche bis zu sehr hohen Dosen erweitert werden, um die Sättigungswerte gut bestimmen zu können. Dieses Verfahren wird im Folgenden als Verfahren 2 bezeichnet.

### 6.1.4. Bestimmung der Sensitivitätskorrektur durch Minimierung

Diese Methode basiert auf dem Postulat aus Gleichung 6.5. Danach sollte die Äquivalenzdosis unabhängig von der Art der Bestimmung sein. Das Ziel dieser Methode ist daher die Minimierung der Abweichung zwischen additiv und regenerativ bestimmter Äquivalenzdosis, d.h. gesucht wird das  $s$ , für das gilt

$$\Delta_D(s) = \text{minimal} \quad (6.13)$$

im Idealfall wird dabei

$$\Delta_D(s) = 0 \quad (6.14)$$

Dieses Verfahren wird im Folgenden als Verfahren 3 bezeichnet.

In Abb. 6.1 (rechts) ist  $\Delta_D$  in Abhängigkeit von  $s$  für die Probe HDS 703 dargestellt. Die deutliche Ausprägung des Minimums ist zu erkennen. In diesem Minimum geht die Abweichung der additiven und regenerativen Äquivalenzdosen auf nahezu null zurück. Ein ähnliches Verhalten wurde für alle untersuchten Grobkornproben festgestellt. Für die in der vorliegenden Arbeit untersuchten Feinkornproben stellt sich ein anderes Bild dar: ein typisches Beispiel ist in Abb. 6.1 (links) dargestellt. Die Abweichung zeigt zwar ein Minimum, dieses Minimum liegt jedoch in dem Bereich von  $s$ , der nicht der tatsächlichen Richtung der Sensitivitätsänderung entspricht, wie sie an Korrekturscheibchen festgestellt wurde. Dies gibt einen Hinweis darauf, dass das hier beschriebene Korrekturverfahren offensichtlich die Sensitivitätsänderungen bei Feinkornproben nicht korrekt erfassen kann. Für die Vergleichsdatierungen von Feinkornproben in diesem

## 6. Datierungsmessungen

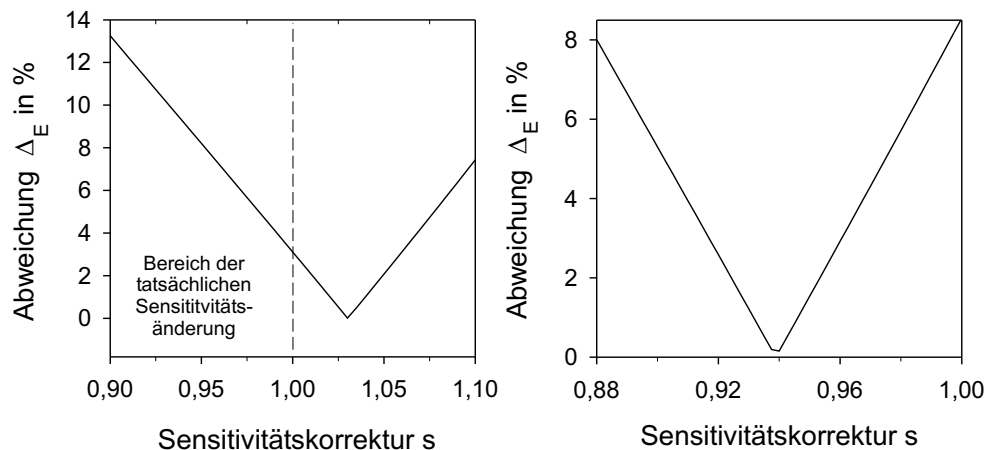


Abbildung 6.1.: **Rechts: Abweichung der Grobkorn-Äquivalenzdosen bei Variation der Sensitivitätskorrektur.** Im Diagramm für die Probe HDS 703 als typisches Beispiel für alle untersuchten Grobkornproben. **Links: Abweichung der Feinkorn-Äquivalenzdosen bei Variation der Sensitivitätskorrektur.** Im Diagramm für die Probe HDS 726 als typisches Beispiel für alle untersuchten Feinkornproben.

Kapitel wurden nur die in den beiden vorangegangenen Abschnitten beschriebenen Korrekturverfahren angewendet, bei den Grobkorndatierungen kamen alle drei Verfahren zum Einsatz.

### 6.1.5. Abhängigkeit der Äquivalenzdosis von der Sensitivitätskorrektur

Unabhängig von der Art der Bestimmung des Korrekturfaktors  $s$  stellt sich die Frage, wie sensitiv das Ergebnis der Dosisbestimmung von dieser Korrektur abhängt. In Abbildung 6.2 ist die Äquivalenzdosis gegen den Korrekturfaktor  $s$  aufgetragen. Das Beispiel zeigt die Abhängigkeit für die Kalifeldspat-Grobkornprobe HDS 703 und die regenerative Methode. Aus dem Schaubild lässt sich bereits ablesen, dass kleine Änderungen des Korrekturfaktors erhebliche Auswirkungen auf die Dosis haben. Ändert sich z.B. der Faktor  $s$  von 0,95 auf 1,00 (d.h. etwa um 5 %), so steigt die Dosis von etwa 49 Gy auf etwa 76 Gy, d.h. um etwa 57 %. Dies bedeutet, dass die Bestimmung des Korrekturfaktors  $s$  ein entscheidender Punkt bei der IR-RL-Datierungsmethode sein wird.

Das Diagramm 6.2 gibt auch einen deutlichen Hinweis darauf, wie stark sich kleinste Sensitivitätsänderungen bei der IR-RL Messung auf die Ergebnisse auswirken können. Es kann also in keinem Fall eine Sensitivitätsänderung mit Hinweis auf die geringe Änderung vernachlässigt werden.

## 6.2. Datierungen an Grobkorn-Feldspäten

Eine erste Serie von Vergleichsdatierungen wurde an fünf Kalifeldspat-Grobkornproben durchgeführt. Vier der Proben wurden von Frau Dr. Annette Kade-

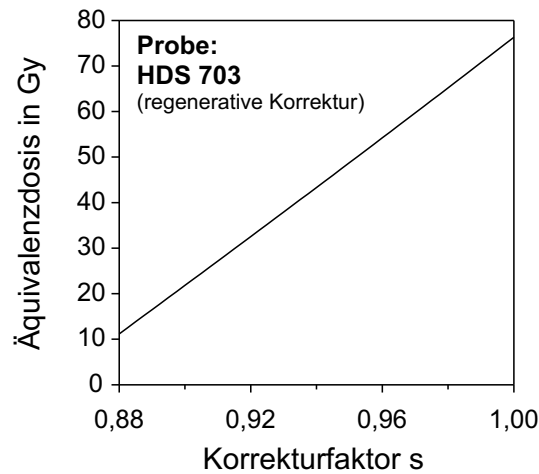


Abbildung 6.2.: **Zusammenhang zwischen Sensitivitätskorrektur und Äquivalenzdosis.**

reit zur Verfügung gestellt. Es handelt sich hierbei um oberflächennahe Sedimente der Profile Bürkle und Schorren im Endmoränengebiet südlich von Biberach in Oberschwaben. Nähere Angaben sind in Anhang A zu finden. An den Sedimentproben wurden bereits von Dr. Annette Kadereit IRSL-Datierungen an der polymineralischen Feinkornfraktion vorgenommen. Deshalb können hier nicht die Äquivalenzdosen direkt verglichen werden, es muss statt dessen auf Grund der unterschiedlichen Dosisleistungen (siehe Kapitel 2.3.3) ein Vergleich der Alter erfolgen. Nicht vergessen werden sollte bei diesem Vergleich die möglichen Unterschiede in den Vorgängen während der Um- und Ablagerung der Sedimente. So kann es z.B. dabei zu unterschiedlichen Bleichungen der einzelnen Korngrößenfraktionen kommen. Geplante Dosisbestimmungen an den Quarz- und Kalifeldspat-Grobkornfraktionen der Proben (Kadereit, pers. Mitteilung) können darüber nähere Hinweise geben und erlauben erst dann eine abschließende Bewertung der RL-Ergebnisse. In diesem frühen Stadium der IR-RL-Datierung geht es aber zunächst um die Frage, ob durch eine IR-RL-Messung Dosen in der richtigen Größenordnung reproduziert werden können. Durch die starke Abhängigkeit der Dosis von den Korrekturen der Sensitivitätsänderung und den noch bestehenden Unsicherheiten in der Bestimmung dieser Korrekturen, sind Abweichungen zu unabhängig bestimmten Ergebnissen zu erwarten.

Eine weitere Probe aus einem höheren Altersbereich wurde von Frau Dr. Barbara Mauz zur Verfügung gestellt. Dabei handelt es sich um eine Kalifeldspat-Grobkornprobe aus einem litoralen Sediment aus Süditalien. Für diese Probe lagen als Referenzergebnis eine TL- sowie IRSL-Datierung an der selben Kalifeldspat-Grobkornfraktion vor (Mauz und Hassler, 2000).

### 6.2.1. Bestimmung des internen K-Gehaltes

Üblicherweise wird der interne K-Gehalt, der zur Berechnung der Dosisleistung benötigt wird (Kap. 2.3.3), mittels  $\beta$ -Zählung bestimmt. Voraussetzung für die-

## 6. Datierungsmessungen

Tabelle 6.1.: Interne K-Gehalte, bestimmt durch EDX-Analyse.

Probe	K-Gehalt in %	K-Gehalt in %
	EDX-Analyse	$\beta$ -Zählung
HDS 703	12,21	
HDS 704	13,46	
HDS 705	10,78	
HDS 706	12,35	
SLdC1	14,04	9,6 <sup>a</sup>
IdCR1	12,28	12,05 <sup>a</sup>

<sup>a</sup> Werte aus Mauz und Hassler (2000)

ses Verfahren ist jedoch eine optimale Mineraltrennung während der Probenaufbereitung. Gelangt bei dieser Aufbereitung z.B. eine größere Menge Quarz in die Probe, führt dies zu einem Verdünnungseffekt bei der  $\beta$ -Zählung und somit zu einer Unterschätzung des  $^{40}\text{K}$ -Gehaltes.

Wünschenswert ist daher eine Methode, die gezielt den K-Gehalt in den Kalifeldspatkörnern bestimmen kann, da nur diese Körner bei der Datierung mittels IR-RL erfasst werden. Eine Möglichkeit, solche Messungen durchzuführen, sind Messgeräte, die sogenannte EDX-Analysen (Energie-Dispersive Röntgenfluoreszenz) erlauben (eine kurze Erläuterung des Funktionsprinzips wurde in Kapitel 5.2.2 gegeben).

Die Nachweisgrenze des EDX-Verfahrens liegt bei etwa 0,1 %. Um optimale quantitative Messungen durchführen zu können, sollte ein Anschliff der Probe vorliegen, da die EDX-Analyse stark geometrieabhängig ist. Zusätzlich sollte eine Mittelung über eine größere Anzahl an Messpunkten durchgeführt werden, da die Methode matrixabhängig ist.

Für erste Tests wurde im Rahmen dieser Arbeit auf Fertigung von Anschliffen verzichtet. Die Messungen wurden an der REM-EDX-Anlage des Mineralogischen Instituts der Universität Heidelberg durchgeführt. Dabei wurden von den Proben zunächst sogenannte Elementmappings durchgeführt, d.h. insbesondere die Kaliumverteilung (sowie Sauerstoff, Aluminium und Silizium) über einen grossen Bereich der Probe vermessen. Mittels dieser Übersichtsaufnahme wurden Kalifeldspat-Körner identifiziert. Innerhalb dieser Körner wurde der Kalium-Gehalt schließlich an 6-8 Messpunkten pro Probe bestimmt. Aufgrund der oben beschriebenen Schwierigkeiten kam es dabei zu Ausreissern (z.B. Kaliumgehalt wesentlich höher als maximaler Kalium-Gehalt in Kalifeldspäten). Diese wurde verworfen und aus den restlichen Werten wurde durch Mittelwertbildung der interne K-Gehalt der Kalifeldspatkörner bestimmt. Die Ergebnisse der Kalium-Bestimmung sind in Tabelle 6.1 aufgelistet.

### 6.2.2. Dosisbestimmung und Altersberechnung

Alle Grobkornproben sind durch Schweretrennung separierte Kalifeldspat-Fractionen der Sedimentproben, dabei wurde bei den Proben HDS 703 - HDS 706



## 6.2. Datierungen an Grobkorn-Feldspäten

vorgegangen, wie in Lang et al. (1996) beschrieben. Die Aufbereitung der Probe SLdC1 ist in Mauz und Hassler (2000) erläutert. Alle Proben lagen in der Korngröße 100-200  $\mu\text{m}$  vor, für die Dosisleistungsberechnung wurde von einem mittleren Korndurchmesser von 150  $\mu\text{m}$  ausgegangen. Für die Dosisleistungsberechnung wurden die Dosimetriedaten (Uran- und Thoriumgehalt, Feuchte,  $\alpha$ -Wert) für die Proben HDS 703 - HDS 706 aus Messungen von Dr. Annette Kadereit übernommen (pers. Mitteilung), für die Probe SLdC1 aus Mauz und Hassler (2000). Lediglich die Kaliumgehalte der Proben wurden, wie im letzten Abschnitt erläutert, neu bestimmt.

Die Messungen wurden mit folgendem Protokoll mit dem RL-Messgerät (siehe Kap. 3.2) durchgeführt (Detektionsfilter: IR 83, 2,5 mm und IF-Kantenfilter 850 nm). Alle Bleichungs- und Pausenschritte erfolgten ohne Unterbrechung der Bestrahlung der Probe. Die Pausenzeit wurde bei der Berechnung der applizierten Dosis berücksichtigt. Der Filter WG 225 der Bleichlampe wurde in 3 mm Dicke verwendet:

1. **Messung des natürlichen Signals.** 4200 x 10 s-Zyklus (ca. 46 h Messdauer).
2. **Bleichung der Probe.** 3600 s Bleichung mit integrierter Hg-Xenon Lampe mit Filter WG 255. Anschließend 1800 s Pause.
3. **Messung des gebleichten Signals.** 4200 x 10 s-Zyklus (ca. 46 h Messdauer).

Für die Proben HDS 703 – HDS 706 wurde der Korrekturfaktor zusätzlich über Korrekturscheibchen bestimmt. Die Bestimmung erfolgte an jeweils einer separaten Teilprobe mit folgendem Protokoll:

1. **Erste Bleichung der Probe.** 3600 s Bleichung mit integrierter Hg-Xenon Lampe mit Filter WG 255. Anschließend 1800 s Pause.
2. **Erste Messung des gebleichten Signals.** 1800 x 10 s-Zyklus (ca. 20 h Messdauer).
3. **Zweite Bleichung der Probe.** 3600 s Bleichung mit integrierter Hg-Xenon Lampe mit Filter WG 255. Anschließend 1800 s Pause.
4. **Zweite Messung des gebleichten Signals.** 1800 x 10 s-Zyklus (ca. 20 h Messdauer).

Die Auswertung und Dosisberechnung erfolgte, wie in Kapitel 6.1 beschrieben. Die Äquivalenzdosen wurden mit der additiven sowie der regenerativen Methode berechnet, dies jeweils für die drei Methoden der Sensitivitätskorrektur. Da für Probe SLdC1 kein Korrekturscheibchen gemessen wurde, erfolgte dort die Bestimmung nur mit Verfahren 2 und 3. Bei den Mittelungen von additiver und regenerativer Dosis innerhalb eines Korrekturverfahrens, sowie bei der Mittelung über alle unterschiedlichen Verfahren wird in den Tabellen kein Fehler angegeben, da die einzelnen Messungen nicht unabhängig voneinander sind. Die

## 6. Datierungsmessungen

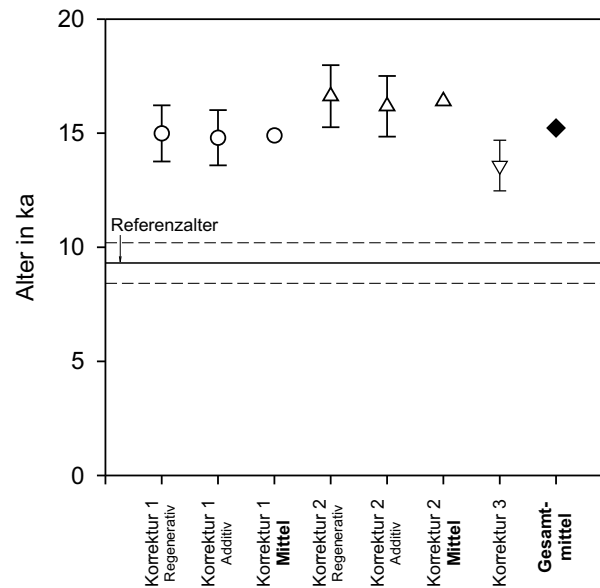


Abbildung 6.3.: **Ergebnisse der Datierung der Probe HDS 703.** Die waagerechte schwarze Linie gibt das Referenzalter an, die waagerechten gestrichelten Linien die Fehlergrenzen des Referenzalters.

Mittelwerte sind lediglich als Anhaltspunkt zu verstehen. Da aufgrund der vorliegenden Ergebnisse nicht das ‚richtige‘ Korrekturverfahren ausgemacht werden kann, wurde für die abschließende Übersicht der Mittelwert aus allen Verfahren benutzt, um mögliche Fehler durch die Korrekturverfahren zu relativieren.

### Die Probe HDS 703

Die Ergebnisse dieser Probe (Abb. 6.3, Tab. 6.2) zeigen innerhalb der verschiedenen Korrekturverfahren konsistente Ergebnisse. Im Vergleich mit dem Referenzalter, das von Dr. Annette Kadereit mittels einer IRSL-Multiple-Aliquot Datierung an der Feinkornfraktion der Probe bestimmt wurde, ist eine Überschätzung um etwa 64 % gegeben.

### Die Probe HDS 704

Auch die Ergebnisse dieser Probe (Abb. 6.4, Tab. 6.3) zeigen innerhalb der verschiedenen Korrekturverfahren konsistente Ergebnisse. Bei Korrekturverfahren 2 ist lediglich ein Trend zu einem geringeren Alter feststellbar. Im Vergleich mit dem Referenzalter, das von Dr. Annette Kadereit mittels einer IRSL-Multiple-Aliquot Datierung an der Feinkornfraktion der Probe bestimmt wurde, ist eine Überschätzung um 146 % gegeben.

### Die Probe HDS 705

Wiederum zeigen sich innerhalb der verschiedenen Korrekturverfahren konsistente Ergebnisse (Abb. 6.5, Tab. 6.4). Im Vergleich mit dem Referenzalter, das

## 6.2. Datierungen an Grobkorn-Feldspäten

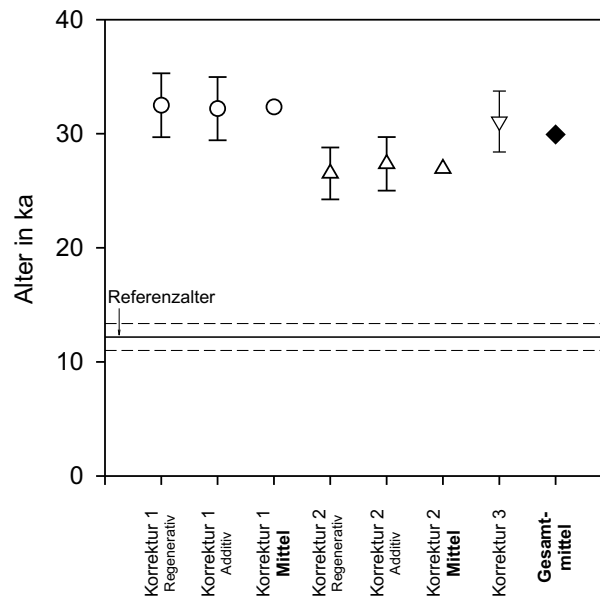


Abbildung 6.4.: **Ergebnisse der Datierung der Probe HDS 704.** Die waagerechte schwarze Linie gibt das Referenzalter an, die waagerechten gestrichelten Linien die Fehlergrenzen des Referenzalters.

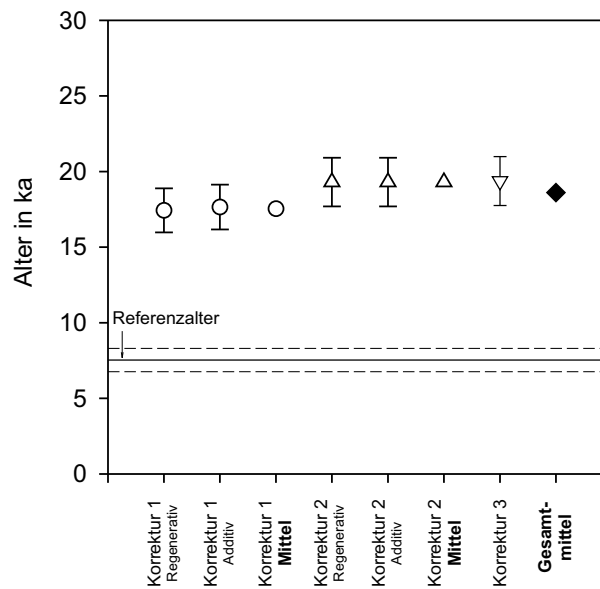


Abbildung 6.5.: **Ergebnisse der Datierung der Probe HDS 705.** Die waagerechte schwarze Linie gibt das Referenzalter an, die waagerechten gestrichelten Linien die Fehlergrenzen des Referenzalters.

## 6. Datierungsmessungen

Tabelle 6.2.: Ergebnisse der Altersbestimmung der Probe HDS 703.

Verfahren	Alter in ka
Regenerative Methode (Korrektur 1)	$14,99 \pm 1,23$
Additive Methode (Korrektur 1)	$14,80 \pm 1,21$
Mittel (Korrektur 1)	14,90
Regenerative Methode (Korrektur 2)	$16,62 \pm 1,36$
Additive Methode (Korrektur 2)	$16,18 \pm 1,33$
Mittel (Korrektur 2)	16,40
Korrektur 3	$13,58 \pm 1,11$
<b>Gesamtmittel</b>	<b>15,23</b>
<b>Referenzwert IRSL</b>	<b><math>9,31 \pm 0,89</math></b>

Tabelle 6.3.: Ergebnisse der Altersbestimmung der Probe HDS 704.

Verfahren	Alter in ka
Regenerative Methode (Korrektur 1)	$32,50 \pm 2,80$
Additive Methode (Korrektur 1)	$32,20 \pm 2,77$
Mittel (Korrektur 1)	32,35
Regenerative Methode (Korrektur 2)	$26,52 \pm 2,28$
Additive Methode (Korrektur 2)	$27,36 \pm 2,35$
Mittel (Korrektur 2)	26,94
Korrektur 3	$31,07 \pm 2,67$
<b>Gesamtmittel</b>	<b>29,93</b>
<b>Referenzwert IRSL</b>	<b><math>12,18 \pm 1,18</math></b>

Tabelle 6.4.: Ergebnisse der Altersbestimmung der Probe HDS 705.

Verfahren	Alter in ka
Regenerative Methode (Korrektur 1)	$17,43 \pm 1,46$
Additive Methode (Korrektur 1)	$17,65 \pm 1,48$
Mittel (Korrektur 1)	17,54
Regenerative Methode (Korrektur 2)	$19,30 \pm 1,61$
Additive Methode (Korrektur 2)	$19,30 \pm 1,61$
Mittel (Korrektur 2)	19,30
Korrektur 3	$19,37 \pm 1,62$
<b>Gesamtmittel</b>	<b>18,61</b>
<b>Referenzwert IRSL</b>	<b><math>7,53 \pm 0,77</math></b>

## 6.2. Datierungen an Grobkorn-Feldspäten

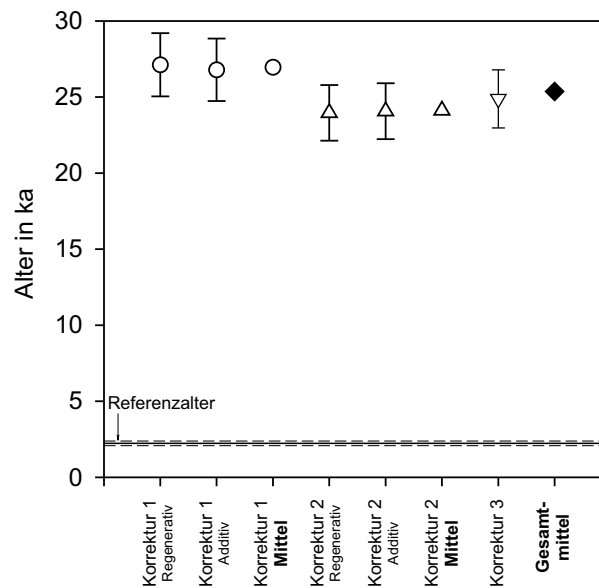


Abbildung 6.6.: **Ergebnisse der Datierung der Probe HDS 706.** Die waagerechte schwarze Linie gibt das Referenzalter an, die waagerechten gestrichelten Linien die Fehlergrenzen des Referenzalters.

von Dr. Annette Kadereit mittels einer IRSL-Multiple-Aliquot Datierung an der Feinkornfraktion der Probe bestimmt wurde, ist auch in diesem Fall eine Überschätzung um 148 % klar ersichtlich.

### Die Probe HDS 706

Obwohl auch bei dieser Probe die verschiedenen Korrekturverfahren konsistente Ergebnisse (Abb. 6.6, Tab. 6.5) ergeben, liegt das Ergebnis außerhalb der Größenordnung des Referenzalters. Im Vergleich mit dem Referenzalter, das von Dr. Annette Kadereit mittels einer IRSL-Multiple-Aliquot Datierung an der Feinkornfraktion der Probe bestimmt wurde, ist in diesem Fall eine Überschätzung um einen Faktor in der Größenordnung von 10 gegeben.

### Die Probe SLdC1

Bei dieser Probe gibt es signifikante Abweichungen innerhalb der Korrektur 2 zwischen additiver und regenerativer Methode (Abb. 6.7, Tab. 6.6). Dennoch liefern die Ergebnisse im Vergleich zu den IRSL- und TL-Referenzaltern, die der Arbeit von Mauz und Hassler (2000) entstammen und ebenfalls an der Feldspat-Grobkornfraktion bestimmt wurden, eine Übereinstimmung im Rahmen der Fehlergrenzen.

### 6.2.3. Diskussion der Ergebnisse der Grobkorndatierungen

In Abbildung 6.8 sind alle Ergebnisse der Grobkorndatierungen dargestellt. Die Fehler der Referenzproben wurden direkt den Daten von Dr. Annette Kadereit

## 6. Datierungsmessungen

Tabelle 6.5.: Ergebnisse der Altersbestimmung der Probe HDS 706.

Verfahren	Alter in ka
Regenerative Methode (Korrektur 1)	$27,12 \pm 2,08$
Additive Methode (Korrektur 1)	$26,79 \pm 2,05$
Mittel (Korrektur 1)	26,96
Regenerative Methode (Korrektur 2)	$23,96 \pm 1,83$
Additive Methode (Korrektur 2)	$24,07 \pm 1,84$
Mittel (Korrektur 2)	24,12
Korrektur 3	$24,88 \pm 1,91$
<b>Gesamtmittel</b>	<b>25,36</b>
<b>Referenzwert IRSL</b>	<b><math>2,23 \pm 0,15</math></b>

Tabelle 6.6.: Ergebnisse der Altersbestimmung der Probe SLdC1.

Verfahren	Alter in ka
Regenerative Methode (Korrektur 2)	$71,87 \pm 6,07$
Additive Methode (Korrektur 2)	$113,08 \pm 9,54$
Mittel (Korrektur 2)	92,48
Korrektur 3	$157,42 \pm 13,29$
<b>Gesamtmittel</b>	<b>114,12</b>
<b>Referenzwert IRSL</b>	<b><math>121 \pm 15</math></b>
<b>Referenzwert TL</b>	<b><math>142 \pm 20</math></b>

und Dr. Barbara Mauz entnommen. Die Fehler der RL-Ergebnisse wurden lediglich abgeschätzt. In die Abschätzung gingen die Fehler der Quellenkalibration sowie der Fehler der Dosisleistung der Referenzproben ein.

Die Proben HDS 703 und 704 entstammen dem Profil Bürkle bei Wintertettenstadt in Oberschwaben. Die Probe HDS 703 wurde einem Horizont aus humushaltigem Seesediment entnommen, der bei der Ansprache im Gelände in den Bereich des Spätpleistozäns eingeordnet wurde. Das IRSL Referenzalter mit 9,31 ka ergibt eine Einordnung in das frühe Holozän. Die RL-Messung überschätzt dieses Alter mit 15,23 ka deutlich. Die Probe HDS 704 aus einem Mittelschutt-Horizont liefert bei der IRSL-Datierung ein Alter von 12,18 ka, das RL-Alter liegt bei 29,93 ka. Für diese Altersdifferenz sind verschiedene Erklärungsmöglichkeiten denkbar. Bereits die Um- und Ablagerung dieses Sediments durch solifluidale Prozesse birgt das Risiko einer unzureichenden Bleichung. Zusätzlich muss die Tatsache berücksichtigt werden, dass im Falle der IRSL die feinkörnige Fraktion, im Falle der RL aber die Grobkornfraktion bearbeitet wurde. Hier ist eine unterschiedliche Bleichung der beiden Fraktionen während der solifluidalen Umlagerung denkbar. Möglicherweise wurde die feinkörnige Fraktion auch durch eine bioturbate Durchmischung zu einem späteren Zeitpunkt

## 6.2. Datierungen an Grobkorn-Feldspäten

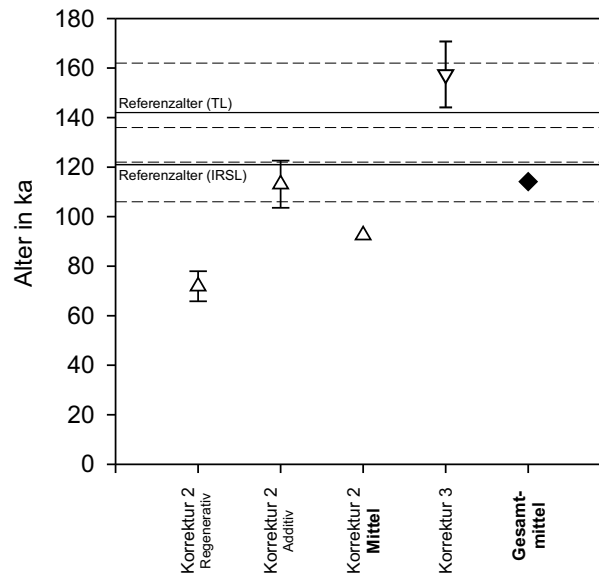


Abbildung 6.7.: **Ergebnisse der Datierung der Probe SLdC1.** Die waagerechten schwarzen Linie geben die Referenzalter (TL und IRSL) an, die waagerechten gestrichelten Linien die Fehlergrenzen der Referenzalter.

einer weiteren Bleichung unterzogen. Stratigraphisch liefern beide Methoden eine korrekte Altersabfolge.

Im Gegensatz hierzu liefern die RL-Ergebnisse der Proben HDS 704 und 705 aus dem Profil Schorren (Bad Schussenried in Oberschwaben) eine Altersinversion. Die IRSL-Alter der Proben zeigen eine stratigraphisch korrekte Altersabfolge. Bei der Probe HDS 705, einer Probe aus einem Seesediment-Horizont kommt es mit 18,61 ka (RL) zu einer deutlichen Überschätzung des IRSL-Alters von 7,53 ka. Die Überschätzung liegt jedoch in einer ähnlichen Größenordnung wie bei den Proben HDS 703 und 704. Anders das Verhalten der Probe HDS 706, die laut Geländeansprache einen Deckschutt-Horizont entnommen wurde. Hier kommt es mit 25,36 ka (RL) zu einer Überschätzung des IRSL-Referenzalters um den Faktor 10. Auch in diesem Fall sind Probleme mit ausreichender Bleichung denkbar, sowohl bei der initialen solifluidalen Umlagerung, als auch bei einer möglicherweise später eingetretenen bioturbaten Durchmischung. Wiederum sind die bei beiden Methoden unterschiedlichen Korngrößenfraktionen zu beachten.

Betrachtet man nun die Proben HDS 703–706 im Zusammenhang, ist für alle Proben eine Überschätzung durch die RL-Alter gegeben. Für die laut IRSL-Ergebnis jüngste Probe kommt es dabei zu einer extremen Überschätzung. Eine mögliche Interpretation wäre eine Tendenz der RL zur Altersüberschätzung. Im Rahmen einer solchen Interpretation könnte die sehr starke Überschätzung der Probe HDS 706 einer unvollständigen Bleichung der Probe zugeschrieben werden. Auf Basis der vorliegenden Daten lässt sich jedoch ein so weitreichender Schluss nicht begründen. Weitere Untersuchungen der Proben HDS 703-706 sind

## 6. Datierungsmessungen

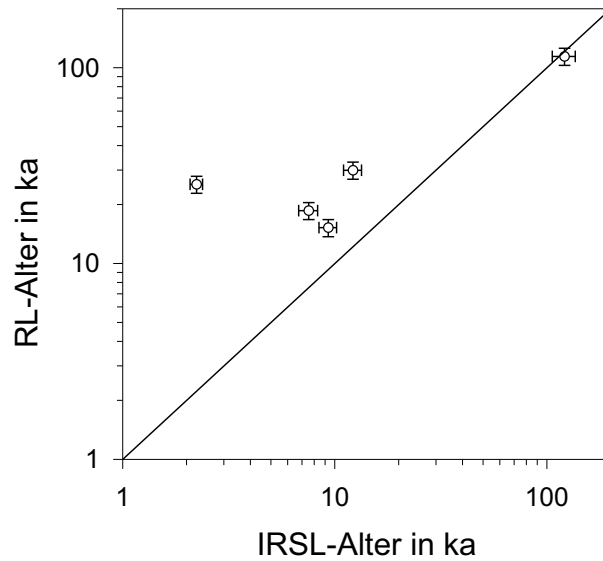


Abbildung 6.8.: **Übersicht über die Ergebnisse der Datierungen an Grobkornproben.** Die jüngste Probe zeigt eine starke Überschätzung. Die Proben im mittleren Bereich zeigen Ergebnisse, die innerhalb der Größenordnung mit den Referenzergebnissen übereinstimmen. Beachtet werden muss hier, dass die Referenzalter dieser Proben an einer anderen Korngrößenfraktion bestimmt wurden. Die älteste Probe, für die zugleich Referenzergebnisse an der selben Korngrößenfraktion vorliegen, zeigt eine gute Übereinstimmung.

noch im Gange. Geplant sind Datierungen an den Grobkornfraktionen der Probe mit unterschiedlichen Methoden (Kadereit, pers. Mitteilung). Erst wenn diese Daten vorliegen, können die RL-Ergebnisse dieser Proben endgültig bewertet werden. Festgestellt werden kann jedoch, dass für die Proben HDS 703–706 die unterschiedlichen Korrekturverfahren im Rahmen der RL-Datierungen weitgehend konsistente Ergebnisse liefern, von einer funktionierenden Sensitivitätskorrektur kann im Fall dieser Proben daher ausgegangen werden.

Für die Probe SLdC1, einem litoralen Sediment aus dem Vorriff der Lokalität San Leonardo di Cutro (Halbinsel Crotona, Süd-Italien), gibt es signifikante Abweichungen der Ergebnisse der unterschiedlichen Korrekturverfahren. Die Ergebnisse von Verfahren 2 (Bestimmung von  $s$  aus den angepassten Funktionen) liefern dabei Werte, die im Rahmen der Fehler mit dem IRSL-Referenzalter übereinstimmen. Der große Unterschied zwischen additiv und regenerativ bestimmten Altern lassen jedoch den Schluss zu, dass das Verfahren 2 bei der vorliegenden Probe nicht angewendet werden kann. Gründe hierfür liegen möglicherweise in der hohen Äquivalenzdosis von über 400 Gy und der daraus resultierenden Unsicherheit in der Bestimmung des Sättigungswertes der RL-Wachstumskurve und damit auch des Faktor  $s$ . Das Ergebnis von Verfahren 3 (Bestimmung von  $s$  durch Minimierung) stimmt im Rahmen der 1- $\sigma$ -Fehler mit dem TL-Referenzalter überein, im Rahmen der 2- $\sigma$ -Fehler auch mit dem IRSL-Referenzwert. Da für die Referenzergebnisse der Probe SLdC1



### 6.3. Dosisbestimmung an polymineralischen Feinkornproben

laut Mauz und Hassler (2000) eine Übereinstimmung mit einem unabhängigen Alter für die Lokalität besteht und die Bestimmung sowohl der TL- und IRSL-Referenzergebnisse wie auch des RL-Alters an der selben Fraktion der Probe erfolgte, kann die Übereinstimmung der RL-Ergebnisse mit den Referenzwerten als Bestätigung für ein korrektes RL-Alter gewertet werden.

Im Überblick über die datierten Grobkornproben erkennt man einen klaren Trend zur Altersüberschätzung. Lediglich das höchste Alter zeigt eine gute Übereinstimmung mit dem Referenzalter. Ob eine Zunahme der relativen Überschätzung mit abnehmendem Alter gegeben ist, kann zwar vermutet, dem vorliegenden Datensatz jedoch nicht mit Sicherheit entnommen werden. Nochmals sei an dieser Stelle auf die Unterschiede bei der Bestimmung der Referenzalter der Proben HDS 703–HDS 706 hingewiesen.

Die Korrekturen der Sensitivitätsänderungen zeigen bis auf einige Ausnahmen eine gute Übereinstimmung innerhalb der verschiedenen Verfahren. Daher bietet sich insbesondere das Verfahren 3 an, das ohne zusätzlichen Messaufwand angewendet werden kann. Hierfür spricht auch, dass bei Probe SLdC1 bei der es Abweichungen zwischen den unterschiedlichen Verfahren gegeben hat, das Verfahren 3 mit hoher Wahrscheinlichkeit als das korrekte Verfahren identifiziert werden konnte, da es auch bei Proben mit sehr hoher Äquivalenzdosis korrekt arbeitet.

### 6.3. Dosisbestimmung an polymineralischen Feinkornproben

Für erste Dosisbestimmungen an polymineralischen Feinkornproben wurde von Frau Dr. Annette Kadereit ein Probensatz zur Verfügung gestellt, für den Referenzergebnisse zur Verfügung standen (Kadereit, 2000). Eine ausführliche Beschreibung der Probenlokalität Herrenbrunnenbuckel in Bretten-Bauerbach, der dieser Satz an Proben entstammt, Beschreibung der Probennahme, Probenaufbereitung und der Messprotokolle zur Bestimmung der Dosen mittels IRSL sind der Arbeit von Kadereit (2000) zu entnehmen.

Da für alle Proben Referenzdosisbestimmungen an der selben Korngrößenfraktion vorliegen, werden im Rahmen des Vergleichs IR-RL mit IRSL nur die Äquivalenzdosen verglichen, da die Dosisleistung hier für beide Methoden die selbe ist. So können auch die Fehlergrenzen der beiden Methoden direkt miteinander verglichen werden, denn die Fehler der Alter der Proben sind durch den Fehler der Dosisleistung dominiert. In den Datentabellen werden jedoch zusätzlich die IRSL-Alter angegeben, um eine Einordnung der Proben zu ermöglichen. Diese Alter sind der Arbeit von Kadereit (2000) entnommen.

Folgende Messparameter fanden bei allen folgenden Messungen zur Bestimmung der Äquivalenzdosen mittels IR-RL Anwendung. Als Messgerät wurde die RL-Messkammer mit Röntgenstimulation benutzt. Die Röhre wurde mit 45 KV betrieben, die Stromwerte  $I_R$  wurden je nach Alter der Probe variiert und sind bei jeder Probe angegeben. Als Detektionsfilter kam eine Kombination aus 2,5 mm IR 83 (Hoya) und einem 850 nm Interferenz-Kantenfilter (850FH90, Andover) zum Einsatz. Der Photomultiplier wurde bei -28 °C betrieben. Vor

## 6. Datierungsmessungen

jedem Messdurchgang wurde der Untergrund der Anlage bestimmt und bei der Auswertung von den Daten subtrahiert. Bleichungen wurde im Sonnenlichtsimulator SOL2 (Dr. Hönle) durchgeführt.

Für die IR-RL Dosisbestimmung standen pro Probe fünf Scheibchen zur Verfügung. An zwei dieser Scheibchen wurde der Korrekturfaktor mit folgendem Messzyklus bestimmt. Alle Bleichungs- und Pausenschritte erfolgten ohne Bestrahlung der Probe.

- Bleichen, 60 min SOL2
- Pause, 30 min
- IR-RL Messungen, 600 x 1 s, bei  $I_R$  Röhrenstrom
- Bleichen, 60 min SOL2
- Pause, 30 min
- IR-RL Messungen, 600 x 1 s, bei  $I_R$  Röhrenstrom

Die restlichen drei Scheibchen wurden folgendem Messprotokoll zur Dosisbestimmung unterzogen:

- IR-RL Messungen, 600 x 1 s, bei  $I_R$  Röhrenstrom
- Bleichen, 60 min SOL2
- Pause, 30 min
- IR-RL Messungen, 600 x 1 s, bei  $I_R$  Röhrenstrom

### Die Probe HDS 724

Die Referenzdosis dieser Probe liegt bei einem Wert von 43,91 Gy. Die Ergebnisse der IR-RL Messungen können der Abbildung 6.9 und der Tabelle 6.7 entnommen werden. Bei dieser Probe wurde mit einem Röhrenstrom von  $I_R=25$  mA gearbeitet, was einer Dosisleistung von  $1,8038 \text{ Gy s}^{-1}$  entspricht. Während der Messdauer von 600 s wird somit eine Dosis von 1082,28 Gy appliziert. Die IR-RL Messung bis in diesen hohen Dosisbereich sollte eine Korrektur nach Verfahren 2 ermöglichen. Die Ergebnisse zeigen, dass in der Tat die beiden Korrekturverfahren 1 und 2 identische Ergebnisse liefern. Das Gesamtmittel der IR-RL Messungen liegt etwa 23 % über dem IRSI Referenzwert.

### Die Probe HDS 725

Die Referenzdosis dieser Probe liegt bei einem Wert von 32,55 Gy. Die Ergebnisse der IR-RL Messungen können der Abbildung 6.10 und der Tabelle 6.8 entnommen werden. Bei dieser Probe wurde mit einem Röhrenstrom von  $I_R=20$  mA gearbeitet, was einer Dosisleistung von  $1,4678 \text{ Gy s}^{-1}$  entspricht. Während der Messdauer von 600 s wird somit eine Dosis von 880,68 Gy appliziert. Auch in diesem Dosisbereich sollte noch eine Korrektur nach Verfahren 2 möglich sein.

### 6.3. Dosisbestimmung an polymineralischen Feinkornproben

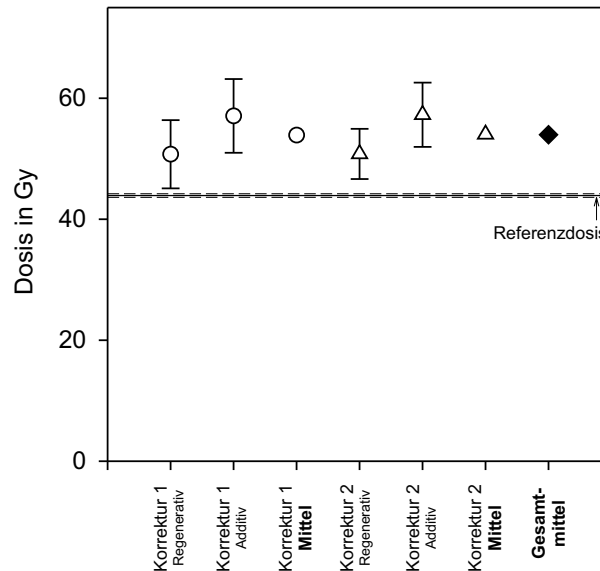


Abbildung 6.9.: **Ergebnisse der Dosisbestimmung der Probe HDS 724.** Die waagerechte schwarze Linie gibt die Referenzdosis an, die waagerechten gestrichelten Linien die Fehlergrenzen der Referenzdosis.

Tabelle 6.7.: **Ergebnisse der Dosisbestimmung der Probe HDS 724.**

Verfahren	Dosis in Gy
Regenerative Methode (Korrektur 1)	50,75 ± 5,64
Additive Methode (Korrektur 1)	57,08 ± 6,10
Mittel (Korrektur 1)	53,91
Regenerative Methode (Korrektur 2)	50,80 ± 4,15
Additive Methode (Korrektur 2)	57,27 ± 5,31
Mittel (Korrektur 2)	54,03
<b>Gesamt-mittel</b>	<b>53,97</b>
<b>Referenzwert IRSL</b>	<b>43,91 ± 0,30</b>
<b>Alter in ka</b>	
IRSL-Alter (nach Kadereit (2000))	12,56 ± 0,73

## 6. Datierungsmessungen

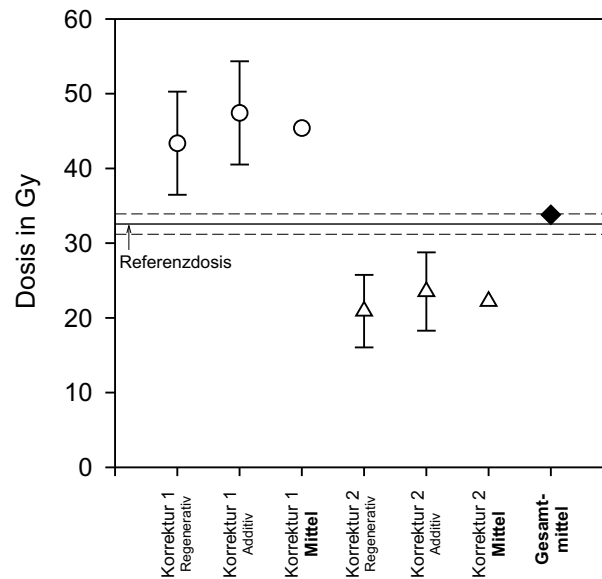


Abbildung 6.10.: **Ergebnisse der Dosisbestimmung der Probe HDS 725.** Die waagerechte schwarze Linie gibt die Referenzdosis an, die waagerechten gestrichelten Linien die Fehlergrenzen der Referenzdosis.

Die Bestimmung des Korrekturfaktors mit zwei Korrekturscheibchen erbrachte Werte, die außerhalb sinnvoller Grenzen lagen. Der Grund konnte nicht festgestellt werden. Um dennoch eine Auswertung der Daten nach der Verfahren 1 durchführen zu können, wurde für diese Probe der Korrekturfaktor der Probe HDS 726 verwendet, da beide Proben aus einem humosen Horizont entstammen. Aufgrund der Übereinstimmung des Materials der beiden Proben wird ein übereinstimmender Korrekturfaktor  $s$  erwartet. Die Ergebnisse der beiden Korrekturverfahren liegen deutlich getrennt. Während das Korrekturverfahren 1 die Dosis überschätzt, liegen die Ergebnisse des Verfahrens 2 unterhalb der Referenzdosis. Das Gesamtmittel der IR-RL Messungen liegt beim IRSL Referenzwert.

### Die Probe HDS 726

Die Referenzdosis dieser Probe liegt bei einem Wert von 28,66 Gy. Die Ergebnisse der IR-RL Messungen können der Abbildung 6.11 und der Tabelle 6.9 entnommen werden. Bei dieser Probe wurde mit einem Röhrenstrom von  $I_R=20$  mA gearbeitet, was einer Dosisleistung von  $1,4678 \text{ Gy s}^{-1}$  entspricht. Während der Messdauer von 600 s wird somit eine Dosis von 880,68 Gy appliziert. Auch in diesem Dosisbereich sollte eine Korrektur nach Verfahren 2 möglich sein. Die Ergebnisse zeigen, dass die Ergebnisse der beiden Korrekturverfahren 1 und 2 innerhalb der Fehler übereinstimmen. Das Korrekturverfahren 2 zeigt jedoch einen Trend zu höheren Werten. Das Gesamtmittel der IR-RL Messungen liegt etwas unterhalb des Referenzwertes, im Rahmen der Fehler stimmen alle Werte mit dem IRSL Referenzwert überein.

### 6.3. Dosisbestimmung an polymineralischen Feinkornproben

Tabelle 6.8.: **Ergebnisse der Dosisbestimmung der Probe HDS 725.** Zum Korrekturfaktor, der bei dieser Probe für das Verfahren 1 verwendet wurde, siehe nähere Erläuterungen im Text.

Verfahren	Dosis in Gy
Regenerative Methode (Korrektur 1)	$43,37 \pm 6,90$
Additive Methode (Korrektur 1)	$47,42 \pm 6,91$
Mittel (Korrektur 1)	45,40
Regenerative Methode (Korrektur 2)	$20,90 \pm 4,85$
Additive Methode (Korrektur 2)	$23,52 \pm 5,24$
Mittel (Korrektur 2)	22,21
<b>Gesamtmittel</b>	<b>33,80</b>
<b>Referenzwert IRSL</b>	<b><math>32,55 \pm 1,36</math></b>
<b>Alter in ka</b>	
IRSL-Alter (nach Kadereit (2000))	$7,20 \pm 0,60$

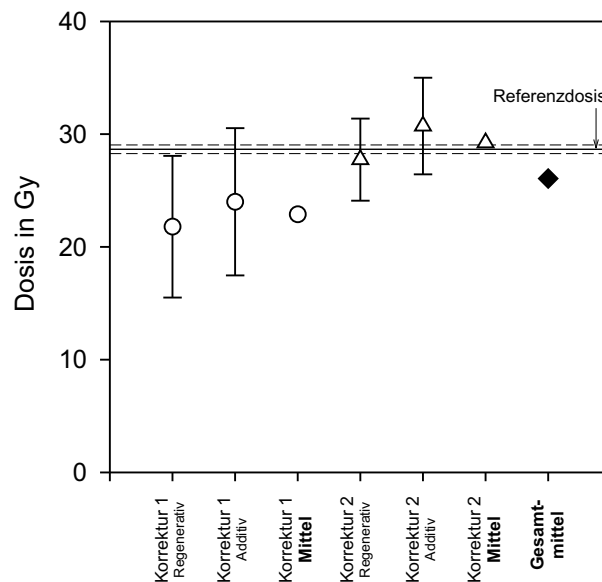


Abbildung 6.11.: **Ergebnisse der Dosisbestimmung der Probe HDS 726.** Die waagerechte schwarze Linie gibt die Referenzdosis an, die waagerechten gestrichelten Linien die Fehlergrenzen der Referenzdosis.

## 6. Datierungsmessungen

Tabelle 6.9.: Ergebnisse der Dosisbestimmung der Probe HDS 726.

Verfahren	Dosis in Gy
Regenerative Methode (Korrektur 1)	$21,79 \pm 6,28$
Additive Methode (Korrektur 1)	$23,99 \pm 6,53$
Mittel (Korrektur 1)	22,89
Regenerative Methode (Korrektur 2)	$27,74 \pm 3,64$
Additive Methode (Korrektur 2)	$30,72 \pm 4,28$
Mittel (Korrektur 2)	29,23
<b>Gesamtmittel</b>	<b>26,06</b>
<b>Referenzwert IRSL</b>	<b><math>28,66 \pm 0,38</math></b>
<b>Alter in ka</b>	
IRSL-Alter (nach Kadereit (2000))	$6,85 \pm 0,40$

Tabelle 6.10.: Ergebnisse der Dosisbestimmung der Probe HDS 727.

Verfahren	Dosis in Gy
Regenerative Methode (Korrektur 1)	$20,37 \pm 2,42$
Additive Methode (Korrektur 1)	$23,28 \pm 2,75$
Mittel (Korrektur 1)	21,82
Regenerative Methode (Korrektur 2)	<0
Additive Methode (Korrektur 2)	<0
<b>Referenzwert IRSL</b>	<b><math>14,8 \pm 0,38</math></b>
<b>Alter in ka</b>	
IRSL-Alter (nach Kadereit (2000))	$4,11 \pm 0,26$

### Die Probe HDS 727

Die Referenzdosis dieser Probe liegt bei einem Wert von 14,8 Gy. Die Ergebnisse der IR-RL Messungen können der Abbildung 6.12 und der Tabelle 6.10 entnommen werden. Bei dieser Probe wurde mit einem Röhrenstrom von  $I_R=10$  mA gearbeitet, was einer Dosisleistung von  $0,7958 \text{ Gy s}^{-1}$  entspricht. Während der Messdauer von 600 s wird somit eine Dosis von 477,48 Gy appliziert. Bei der Auswertung der Daten zeigte sich, dass die Messung bis in diesen Dosisbereich nicht ausreicht, um einen korrekten Korrekturfaktor nach Verfahren 2 zu bestimmen. Die Ergebnisse aus Korrekturverfahren 1 der IR-RL Messungen liegen etwa 47 % oberhalb des IRSL Referenzwertes.

### Die Probe HDS 728

Die Referenzdosis dieser Probe liegt bei einem Wert von 11,94 Gy. Die Ergebnisse der IR-RL Messungen können der Abbildung 6.13 und der Tabelle 6.11 ent-

### 6.3. Dosisbestimmung an polymineralischen Feinkornproben

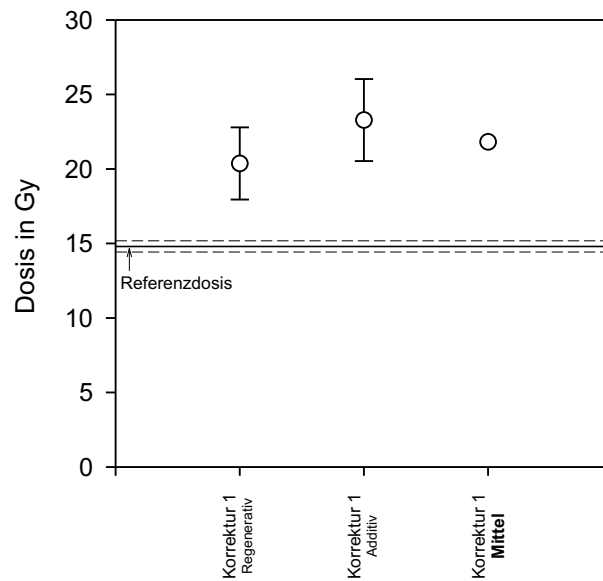


Abbildung 6.12.: **Ergebnisse der Dosisbestimmung der Probe HDS 727.** Die waagerechte schwarze Linie gibt die Referenzdosis an, die waagerechten gestrichelten Linien die Fehlergrenzen der Referenzdosis.

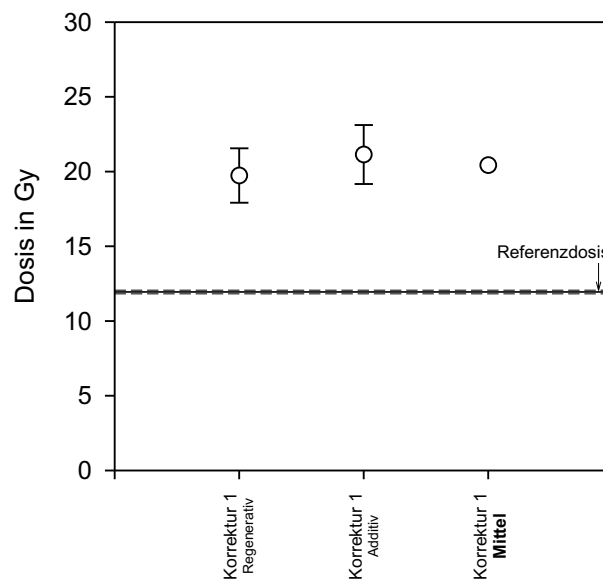


Abbildung 6.13.: **Ergebnisse der Dosisbestimmung der Probe HDS 728.** Die waagerechte schwarze Linie gibt die Referenzdosis an, die waagerechten gestrichelten Linien die Fehlergrenzen der Referenzdosis.

## 6. Datierungsmessungen

Tabelle 6.11.: **Ergebnisse der Dosisbestimmung der Probe HDS 728.**

Verfahren	Dosis in Gy
Regenerative Methode (Korrektur 1)	$19,73 \pm 1,82$
Additive Methode (Korrektur 1)	$21,14 \pm 1,97$
Mittel (Korrektur 1)	20,43
Regenerative Methode (Korrektur 2)	<0
Additive Methode (Korrektur 2)	<0
<b>Referenzwert IRSL</b>	<b><math>11,94 \pm 0,12</math></b>
Alter in ka	
IRSL-Alter (nach Kadereit (2000))	$2,97 \pm 0,21$

nommen werden. Bei dieser Probe wurde mit einem Röhrenstrom von  $I_R=10$  mA gearbeitet, was einer Dosisleistung von  $0,7958 \text{ Gy s}^{-1}$  entspricht. Während der Messdauer von 600 s wird somit eine Dosis von 477,48 Gy appliziert. Bei der Auswertung der Daten zeigte sich, dass die Messung bis in diesen Dosisbereich nicht ausreicht, um einen korrekten Korrekturfaktor nach Verfahren 2 zu bestimmen. Die Ergebnisse nach Korrekturverfahren 1 der IR-RL Messungen liegen etwa 71 % oberhalb des IRSL Referenzwertes.

### 6.3.1. Diskussion der Ergebnisse der Dosisbestimmung an Feinkornproben

In Abbildung 6.14 sind die Ergebnisse der Feinkorn-Dosisbestimmungen zusammengefasst. Die Fehler der Referenzproben wurden direkt den Daten von Dr. Annette Kadereit entnommen. Die Fehler der RL-Ergebnisse wurden lediglich abgeschätzt. In die Abschätzung ging unter anderem der Fehler der Kalibration der Röntgenquelle ein.

Die beiden Proben im mittleren Dosisbereich zeigen eine gute Übereinstimmung mit den Referenzwerten. Bei der Probe im oberen Bereich kommt es zu einer leichten Überschätzung der Dosis. Die beiden Proben im niederen Dosisbereich zeigen hingegen eine sehr starke Überschätzung.

Die Proben HDS 724–728 entstammen dem Profil Westflanke-Westseite des Baggerschurfes Herrenbrunnenbuckel in Bretten-Bauerbach. Bei der IRSL-Datierung zeigte die Probenserie eine gute Datierbarkeit. Die stratigraphische Abfolge der Sedimente wurde bei der Datierung korrekt nachgebildet. Die Einordnung der Ergebnisse des Profils in den weiteren Kontext der Grabung Bretten-Bauerbach bestätigt die vorliegenden IRSL-Alter (Kadereit, 2000).

Bei der Probe HDS 724 handelt es sich um eine Probe aus einem Lösshorizont. Aufgrund des äolischen Transports des Sediments kann mit einer vollständigen Bleichung gerechnet werden. Die RL-Dosis liegt mit 53,97 etwa 20 % über der IRSL-Referenzdosis. Die beiden Proben HDS 725 und 726 wurden einer humosen Zone innerhalb des Profils entnommen. Für beide Proben stimmen die Gesamtmittel aus allen Korrekturverfahren mit den IRSL-Referenzwerten überein,



### 6.3. Dosisbestimmung an polymineralischen Feinkornproben

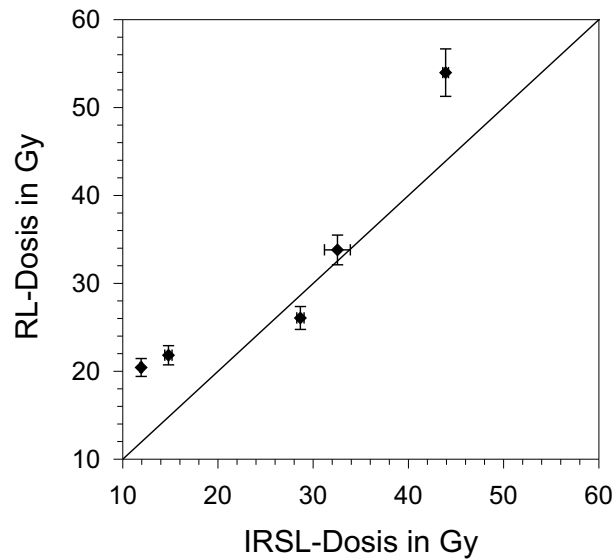


Abbildung 6.14.: **Übersicht über die Ergebnisse der Feinkorndatierungen.** Die jüngsten Proben zeigen eine starke Überschätzung, die eventuell durch eine Unsicherheit in der Bestimmung der Sensitivitätskorrektur verursacht wird. Die Proben im mittleren Dosisbereich zeigen eine gute Übereinstimmung. Die älteste Probe zeigt eine signifikante Überschätzung, liegt jedoch in der Größenordnung des Referenzergebnisses.

obwohl es zwischen den einzelnen Korrekturverfahren deutliche Abweichungen gibt.

Die Proben HDS 727 und 728 wurden aus kolluvialen Sedimentschichten entnommen. Die Untersuchungen im Rahmen der IRSL-Datierung zeigten eine ausreichende Bleichung der Kolluvien (Kadereit, 2000). Die RL-Ergebnisse liegen für beide Proben deutlich über den IRSL-Ergebnissen, für die Probe HDS 728, laut IRSL-Messung die jüngere der Proben, fällt die Überschätzung am stärksten aus.

Betrachtet man die Ergebnisse für die Proben HDS 724–728 im Überblick, zeigen die RL-Alter (berechnet unter Verwendung der Dosisleistungswerte aus Kadereit (2000)) ebenfalls eine stratigraphisch korrekte Altersabfolge (Tabelle 6.12). Vor allem im unteren Altersbereich zeigen sich stärkere Überschätzungen. Unterstellt man einen Unterschied im Bleichverhalten zwischen IRSL und RL und versucht so die Überschätzungen zu erklären, findet man in den vorliegenden Ergebnissen der Dosisbestimmungen an Feinkornproben dafür keine schlüssige Begründung, liefern doch gerade die Sedimente HDS 725 und 726 der humosen Zone eine gute Übereinstimmung zwischen IRSL und RL. Das äolisch transportierte Sediment HDS 724, für das man die beste Bleichung innerhalb dieses Profil unterstellen würde, liefert jedoch bei der RL Messung eine, wenn auch nur geringe, Überschätzung.

Die Ergebnisse der unterschiedlichen Korrekturverfahren zeigen zum Teil eindeutige Abweichungen, eine Anwendung des Verfahrens 3 ist nicht möglich (Ka-

## 6. Datierungsmessungen

Tabelle 6.12.: **Überblick über die Alter der Feinkornproben.** In dieser Tabelle sind, zur leichteren chronologischen Einordnung, die RL-Alter der Feinkornproben berechnet. Dazu wurde das Gesamtmittel der Äquivalenzdosen aus den unterschiedlichen Korrekturverfahren verwendet und die Dosisleistungswerte aus Kadereit (2000) herangezogen. Die Fehler der RL-Alter wurden aufgrund der Probleme mit der Bestimmung des Korrekturfaktors durchgehend auf 10 % festgelegt.

Probe	IRSL-Alter in ka	RL-Alter in ka
HDS 724	12,56 $\pm$ 0,73	15,44 $\pm$ 1,54
HDS 725	7,20 $\pm$ 0,60	7,48 $\pm$ 0,75
HDS 726	6,85 $\pm$ 0,40	6,23 $\pm$ 0,62
HDS 727	4,11 $\pm$ 0,26	6,06 $\pm$ 0,61
HDS 728	2,97 $\pm$ 0,21	5,08 $\pm$ 0,51

pitel 6.1). Dies sind deutliche Hinweise auf ein grundsätzliches Problem bei der Sensitivitätskorrektur. Die in dieser Arbeit angewandten Methoden wurden an Grobkornproben entwickelt und für Feinkorndosisbestimmungen lediglich unverändert übernommen. Weitere Untersuchungen an Feinkornproben sollten sich deshalb zunächst mit den Sensitivitätsänderungen und deren Korrektur beschäftigen. Ein Ansatzpunkt ist die Tatsache, dass bei den vorgestellten Feinkorndosismessungen die Bestrahlung bei Bleichung und bei Pausen im Gegensatz zu den Grobkorndosismessungen unterbrochen wurde. Da das Verhalten des roten Peaks in dieser Arbeit nur für eine ununterbrochene Bestrahlung untersucht wurde, könnten sich hier Änderungen bei der Feinkorndosismessung ergeben.

Ein weiterer Ansatzpunkt bietet die Erhöhung der Messgenauigkeit. In der verwendeten Messgeometrie geht der überwiegende Anteil der Lumineszenz aufgrund unvollständiger Lichtsammlung verloren. Hier sind deutliche Verbesserungen möglich. Dadurch könnten insbesondere die Ergebnisse der Dosisbestimmungen im unteren Dosisbereich verbessert werden, da hier das natürliche IR-RL Signal im steil abfallenden Teil der exponentiell abnehmenden Wachstumskurve liegt.

Angesichts dieser Einschränkungen deuten die bereits in diesem frühen Stadium zum Teil guten Übereinstimmungen zu den Referenzergebnissen auf ein großes Potential der IR-RL Datierung von polymineralischen Feinkornproben hin.

### 6.4. Schlussfolgerungen aus den Ergebnissen der Datierungen

Betrachtet man die vorliegenden Datierungsergebnisse und die diskutierten Effekte im Überblick, ergeben sich folgende Schlußfolgerungen:

#### 6.4. Schlussfolgerungen aus den Ergebnissen der Datierungen

1. Die Verfahren zur Korrektur der Sensitivitätsänderungen waren bei der Anwendung auf die untersuchten Grobkornproben erfolgreich und stimmten innerhalb der unterschiedlichen Verfahren überein.
2. Die Überschätzungen der RL-Alter bei den untersuchten Grobkornproben können nach dem derzeitigen Wissensstand zum Teil (z.B. bei Probe HDS 706) auf unzureichender Bleichung basieren. Ob diese Erklärung auch für die Proben HDS 703–705 zutrifft, kann erst nach weiteren Messungen geklärt werden. Hier sind zwei Punkte zu untersuchen. Zunächst müssen Datierungen mit weiteren Methoden an den Grobkornfraktionen zeigen, ob die Unterschiede der Ergebnisse durch Unterschiede in der Bleichung aufgrund von Korngrößenunterschieden bedingt sind. Sollten diese Messungen keine neuen Erkenntnisse ergeben, muss das Bleichverhalten der RL nochmals detailliert untersucht werden. Obwohl Messungen im Rahmen dieser Arbeit (Kapitel 5.4), als auch Untersuchungen von Krbetschek et al. (2000) ein Bleichverhalten ähnlich dem der IRSL ergeben haben, könnten Einschränkungen im Spektrum während der Bleichung, z.B. bei Transport des Sedimentes in einer wässrigen Suspension, zu einer unvollständigen Bleichung führen.
3. Die Verfahren zur Korrektur der Sensitivitätsänderungen waren bei der Anwendung auf die untersuchten Feinkornproben mit Unsicherheiten behaftet. Insbesondere stimmten die Ergebnisse innerhalb der unterschiedlichen Verfahren teilweise nicht überein. Hier liegt ein Ansatzpunkt für weitere Untersuchungen. Das Verhalten der roten Emission muss für das Messprotokoll der Feinkorndatierung detailliert untersucht werden. Die Sensitivitätskorrektur muss verbessert werden, so dass auch bei Feinkorndatierungen, wie bei den vorliegenden Grobkorndatierungen, die Differenz zwischen regenerativ und additiv bestimmter Äquivalenzdosis gegen Null geht.
4. Die Überschätzungen für die Feinkornproben (HDS 724, 727, 728) können mit hoher Wahrscheinlichkeit nicht durch mangelhafte Bleichung erklärt werden. Die Probleme bei der Sensitivitätskorrektur können zum Teil Ursache für die Überschätzung sein, obwohl die Proben HDS 725 und 726 trotz Abweichung zwischen verschiedenen Verfahren der Sensitivitätskorrektur im Mittel korrekte Ergebnisse liefern.
5. Die vorliegenden Ergebnisse zeigen, trotz der Überschätzungen bei Teilen der Proben, einen für Datierungszwecke einsetzbaren dosimetrischen Effekt der IR-RL-Emission. Die Ursachen der Altersüberschätzung, d.h. insbesondere die Antwort auf die Frage, ob es sich um ein grundsätzliches Problem der IR-RL-Methode handelt oder um probenspezifische Effekte, können unter anderem durch eine Vergrößerung der Datenbasis gefunden werden. Begleitet werden sollten solche Vergleichsdatierungen durch weiterführende Grundlagenuntersuchungen.
6. Die Ergebnisse der Feinkorndatierungen deuten ein großes Potential der Methode an. Eine Optimierung der Feinkorndatierungsmethode ist aus mehreren

## 6. Datierungsmessungen

Gründen wünschenswert. Bei den vorliegenden Grobkornmessungen wurde eine Äquivalenzdosis vom etwa 400 Gy korrekt reproduziert. Aufgrund der Möglichkeit, die Wachstumskurve der IR-RL sehr exakt zu bestimmen, besteht die Hoffnung, mit Methoden der IR-RL-Datierung in höhere Altersbereiche vordringen zu können. Die Feinkorn-IR-RL mit der in dieser Arbeit beschriebenen Röntgenstimulation ermöglicht bei einer Automatisierung der Messung einen Probendurchsatz von etwa 60 Single-Aliquot-Äquivalenzdosisbestimmungen in 24 h, weitgehend unabhängig von der Palaeodosis der Proben.

## 7. Zusammenfassung

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden zunächst drei Messgeräte für Untersuchungen der Radiolumineszenz entwickelt und aufgebaut. Alle Geräte haben sich sowohl bei Grundlagenuntersuchungen als auch bei Dosisbestimmungen bewährt. Mit dem modifizierten TL/OSL/RL-Spektrometer steht nun ein Instrument zur Verfügung, das verlässliche spektrale Messungen auch im Wellenlängenbereich um 900 nm ermöglicht. Das RL-Messgerät mit Einzelphotonenzählung bietet sich für Präzisionsmessungen auch über längere Messdauern mit hoher Reproduzierbarkeit an. Mit dem RL-Messgerät mit Röntgenstimulation wird innerhalb der Lumineszenzdatierung Neuland betreten. Bisher waren lediglich radioaktive Nuklide zur Bestrahlung von Proben eingesetzt worden. Erste Messungen mit der Röntgenquelle zeigen ein stabiles und präzises Messverhalten der Anlage. Hohes Potential besteht im Ausbau der Röntgenanlage. So kann durch Intergration einer TL-Heizplatte und möglicherweise durch Einsatz einer spektralen Detektionseinheit sowie dem Anbau von OSL-Laserstimulation und einer geeigneten Bleicheinrichtung ein multifunktionales Messgerät geschaffen werden, welches insbesondere bei der Aufklärung physikalischer Vorgänge der Lumineszenz wertvolle Beiträge liefern kann. Gerade noch rechtzeitig zum Abschluss dieser Arbeit präsentiert einer der weltweit führenden Hersteller von Messgeräten für Lumineszenzdosimetrie (Risø National Laboratory) ein erweitertes Lumineszenzmessgerät, das Messungen von Radiolumineszenz ermöglicht (Poolton et al., 2001). Die Arbeiten der Lumineszenzlabors in Heidelberg und Freiberg sowie die Zusammenarbeit mit den Entwicklern dieses neuen Gerätes (Schilles et al., 2001) haben vermutlich einen entscheidenden Anteil an dieser Neuentwicklung und deuten auf ein breites Interesse an Radiolumineszenzuntersuchungen hin.

Die grundlegenden Untersuchungen der IR-Radiolumineszenz brachten neue Erkenntnisse. Besonders die Entdeckung von Sensitivitätsänderungen hat für die Datierungsanwendung weitreichende Konsequenzen. Erst wenn ein zuverlässiges Korrekturverfahren für diese Effekte zur Verfügung steht, können vertrauenswürdige Ergebnisse präsentiert werden. Ein erster Ansatz für eine Korrektur wurde vorgestellt und bei Dosisbestimmungen eingesetzt. Weitere Untersuchungen brachten Erkenntnisse, die die Grundlage für zuverlässige Dosisbestimmungen bilden. Zu nennen sind hier die Empfehlung der Detektionsfilter und den Vergleich der Bleichvorgänge mit der infrarot stimulierten Lumineszenz.

Die abschließend durchgeführten Dosisbestimmungen an verschiedenen Proben erlauben keine endgültige Beurteilung der IR-RL Methode. Teilweise wurden gute Übereinstimmungen mit Referenzergebnissen erzielt, teilweise sind aber auch deutliche Abweichungen feststellbar. Die vorgestellten Ansätze zur Korrektur der Sensitivitätsänderungen waren insbesondere bei Grobkornproben erfolg-

## 7. Zusammenfassung

reich. Hier gilt es nun, durch kontinuierliche Vergleichsmessungen von mit etablierten Methoden bearbeiteten Proben eine breite Datenbasis zu schaffen und systematische Abweichungen zu entdecken. Ein besonderes Augenmerk sollte dabei auf junge Proben gelegt werden, die in den vorliegenden Ergebnissen die größten Abweichungen zeigten. Zum ersten mal wurde das IR-RL Verfahren auf polymineralische Feinkornproben angewendet. Zugleich kam bei diesen Untersuchungen die im Bereich der Datierung neue Technik der Radiolumineszenz mit Röntgenstimulation zum Einsatz. Die ersten Ergebnisse sind vielversprechend und deuten auf ein großes Potential dieses Verfahrens hin.

Sollte sich die erste Korrelation zwischen Kalifeldspat und IR-RL-Emission, wie sie im Rahmen der vorliegenden Arbeit bei orts aufgelösten Untersuchungen beobachtet wurde, bestätigen, bietet sich das IR-RL-Verfahren besonders für polymineralische Materialien an. Nimmt man die Tatsache hinzu, dass beim IR-RL-Verfahren kein Vorheizen der Probe notwendig ist und die Bestrahlung/Stimulation der Probe durch Röntgenstrahlung auch an größeren Probenstücken möglich ist, scheint eine Anwendung der IR-RL in der Oberflächendatierung Vorteile mit sich zu bringen.

Bei der Beurteilung der bisher erzielten Ergebnisse bedarf es jedoch einer Relativierung. In die Entwicklung der IR-RL Datierungsmethode wurden bisher etwa 7 Arbeitsjahre investiert. Vergleicht man dies mit der etablierten Methode der OSL, so kommt man bei einer konservativen Schätzung auf etwa 500 Arbeitsjahre seit der ersten Beschreibung des Effektes im Jahre 1981.

Ob die Methode der Radiolumineszenzdatierung und insbesondere das IR-RL Verfahren jemals die zuverlässigen Methoden der optisch stimulierten Lumineszenz ergänzen oder gar ersetzen kann, ist nach dem derzeitigen Wissensstand schwer abschätzbar. Klar ist jedoch schon jetzt, dass durch die Untersuchungen der Radiolumineszenz grundlegend neue Einsichten in die physikalischen Vorgänge der Lumineszenzdosimetrie gewonnen werden können. Diese Erkenntnisse sind für eine weitere Entwicklung der Lumineszenzdatierung im Ganzen von hohem Wert, da auch heute noch bei vielen Problemen im wesentlichen nach empirischen Methoden vorgegangen wird und nicht nach zugrunde liegenden Effekten gesucht wird. Dieses Vorgehen stösst zwangsläufig früher oder später an Grenzen, die nur durch fundiertes Wissen um die physikalischen Vorgänge der Lumineszenz überwunden werden können.

# A. Probenbeschreibung

## A.1. Allgemeines zu Feldspäten

Die bevorzugten Materialien für die Lumineszenzdatierung sind die Silikate Quarz und Feldspat. Dies bedeutet eine breite Anwendbarkeit der Methode auf geologische, geographische sowie archäologische Fragestellungen, da diese Materialien in der Natur sehr häufig anzutreffen sind.

Die Erde besteht außerhalb ihres Nickel-Eisen-Kerns überwiegend aus Sauerstoffanionen an die Kationen anderer Elemente angelagert sind. Die Gesteine der Erdkruste bestehen zu mehr als 99% aus Siliziumverbindungen. Der überwiegende Anteil davon sind Si-O-Verbindungen, die sogenannten Silikate (Schröcke und Weiner, 1981).

Die gängige atomare Anordnung der Silikate ist das Silizium-Sauerstoff-Tetraeder. Dabei sind die Sauerstoffatome um ein zentrales Siliziumatom angeordnet.

Beim Quarz gehen dabei alle Sauerstoffatome dieses Tetraeders eine weitere Verbindung mit einem Siliziumatom ein. Es entsteht somit eine Zahlenverhältnis von Sauerstoff zu Silizium von 2:1. Die chemische Formel für Quarz lautet damit  $\text{SiO}_2$ .

Bei den Feldspäten stellt sich die Situation etwas komplexer dar. Im oben erwähnten Silizium-Sauerstoff-Tetraeder kann das Siliziumatom durch ein Aluminiumatom substituiert werden. Dabei wird ein  $\text{Si}^{4+}$  durch ein  $\text{Al}^{3+}$  ersetzt. Die fehlende positive Ladung kann in dieser Konstruktion von verschiedenen Kationen geliefert werden. Es sind dies im allgemeinen die Alkali-Metalle Natrium und Kalium ( $\text{Na}^{1+}$ ,  $\text{K}^{1+}$ ) sowie das Erd-Alkali-Metall Calcium ( $\text{Ca}^{2+}$ ).

In der Feldspatstruktur wird von vier Siliziumatomen eines durch ein Aluminiumatom plus Natrium oder Kalium ersetzt. Wird jedoch ein Calciumkation eingebaut, wird ein weiteres Aluminiumkation benötigt, um die Ladungsbilanz auszugleichen. Die Silizium- oder Aluminiumatome sind wiederum wie beim Quarz mit je zwei Sauerstoffatomen verbunden. Dadurch ergeben sich folgende chemischen Formeln für die verschiedenen Feldspatarten:

- **Kalifeldspat:**  $\text{K}[\text{AlSi}_3\text{O}_8]$ , Orthoklas
- **Natronfeldspat:**  $\text{Na}[\text{AlSi}_3\text{O}_8]$ , Albit
- **Kalkfeldspat:**  $\text{Ca}[\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_8]$ , Anorthit

In diesen Reinformen treten die Feldspäte in der Natur fast nie auf. Vielmehr bilden sie drei Endglieder von Mischkristallreihen. Einen Überblick über die Mischformen und ihre Nomenklatur bietet Abbildung A.1. Die Mischkristallbildung ist vor allem stark von der Bildungstemperatur abhängig (Turekian (1972), Schröcke und Weiner (1981)).

## A. Probenbeschreibung

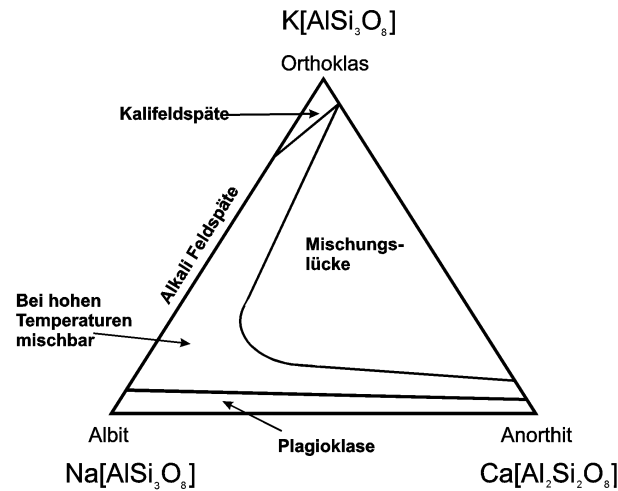


Abbildung A.1.: Feldspat-Mischkristallsystem. Nach Nickel (1980).

Tabelle A.1.: Feldspatproben für Grundlagenuntersuchungen.

Probenbezeichnung	Anteil in %			
	K-Feldspat	Na-Feldspat	Ca-Feldspat	Quarz
NoPo	70	25	2	3
NoSo	8	66	9	8
G40	62	25	4	9
F20	24	60	7	9

## A.2. Proben für Grundlagenuntersuchungen

Für diese Untersuchungen kamen kommerziell erhältliche Feldspäte zum Einsatz. Dieses Material stammt aus natürlichen Vorkommen und wird vor allem an Kunden aus der Porzellan- und Keramikindustrie verkauft. Vorteile dieser Materialien sind die nahezu unbegrenzte Verfügbarkeit und gute Homogenität über große Materialmengen.

Für die Materialien werden von den Herstellern chemische Analysen mitgeliefert. Leider liefern nicht alle Anbieter mineralogische Analysen. Deshalb wurde bei diesen Proben aus der chemischen Zusammensetzung auf die mineralogische Zusammensetzung rückgerechnet unter der Annahme, dass in den Proben nur Feldspäte und Quarz zu finden ist (Tabelle A.1). Das Verfahren wurde an den Proben überprüft, für die mineralogische Analysen vorlagen und zeigte dabei gute Übereinstimmung. Bei allen Proben wurde die Korngrößenfraktion von 100-200  $\mu\text{m}$  abgesiebt und für die Messungen verwendet. Folgende Materialien wurden eingesetzt:

- **Probe: NoPo.** ‚Norfloat Potash Felspar Sand‘ des Herstellers Cookson-Matthey. Herkunft laut Hersteller ist Norwegen.



- **Probe: NoSo.** ‚Norfloat Soda Felspar Sand‘ der Firma Cookson-Matthey. Herkunft laut Hersteller ist Norwegen.
- **Probe: G40.** ‚G-40 Feldspar‘ der Firma The Feldspar Corporation, Atlanta.
- **Probe: F20.** ‚F-20 Feldspar‘ der Firma The Feldspar Corporation, Atlanta.

## A.3. Datierungsproben

### A.3.1. Feinkornproben

Die Proben HDS 724-729 wurden freundlicherweise von Dr. Annette Kadereit zur Verfügung gestellt. Die Proben entstammen alle dem Profil Westflanke-Westseite das im Rahmen eines Baggerschurfes am Herrenbrunnenbuckel in Bretten-Bauerbach bearbeitet wurde. Die Proben wurden der üblichen Aufbereitungsprozedur für polymineralische Feinkornproben unterzogen. Ausführliche Informationen zu Probenaufbereitung, Herkunft der Proben, Stratigraphie und Datierungen an den Proben sind in Kadereit (2000) nachzulesen.

- **Probe: HDS 724.** Probe aus Lößhorizont.
- **Probe: HDS 725.** Probe aus humoser Zone.
- **Probe: HDS 726.** Probe aus humoser Zone.
- **Probe: HDS 727.** Probe aus bronzezeitlichem Kolluvium.
- **Probe: HDS 728.** Probe aus Kolluvium der Urnenfeldkultur.

### A.3.2. Grobkornproben

Die Proben SLdC1 und IdCR1 wurden freundlicherweise von Dr. Barbara Mauz zur Verfügung gestellt. Die Proben wurden der üblichen Aufbereitungsprozedur unterzogen. Durch Schweretrennung wird dabei die K-Feldspat Fraktion aus der Probe abgetrennt (Lang et al., 1996).

- **Probe: SldC1.** Litorale Sedimentprobe aus dem Vorriff der Lokalität San Leonardo di Cutro (Halbinsel Crotone, Süd-Italien). Nähere Informationen sind in Mauz und Hassler (2000) zu finden.
- **Probe: IdCR1.** Litorale Sedimentprobe aus einem Algenriff der Lokalität Isola di Capo Rizzuto (Halbinsel Crotone, Süd-Italien). Nähere Informationen sind in Mauz und Hassler (2000) zu finden.

Die Proben HDS 702-706 wurden freundlicherweise von Dr. Annette Kadereit zur Verfügung gestellt. Die Proben wurden der üblichen Aufbereitungsprozedur unterzogen. Sie entstammen den Profilen Bürkle bei Winterstettenstadt (beschrieben unter der Bezeichnung Profil 5B in Kösel (1996)) und Schorren bei

### *A. Probenbeschreibung*

Bad Schussenried (beschrieben unter der Bezeichnung Profil 4C in Kösel (1996)) in Oberschwaben. Durch Schweretrennung wurde die K-Feldspat-Fraktion im Korngrößenbereich von 100-200  $\mu\text{m}$  aus der Probe abgetrennt (Lang et al., 1996). Aus dem Profil Bürkle entstammen die Proben:

- **Probe: HDS 702.** Probe aus Deckschutt-Horizont. 34 cm unter Geländeoberfläche.
- **Probe: HDS 703.** Probe aus humushaltigem Seesediment. 66 cm unter Geländeoberfläche.
- **Probe: HDS 704.** Probe aus einem Mittelschutt-Horizont. 97 cm unter Geländeoberfläche.

Folgende Proben entstammen dem Profil Schorren:

- **Probe: HDS 705.** Probe aus Seesediment-Horizont. 140 cm unter Geländeoberfläche.
- **Probe: HDS 706.** Probe aus Deckschutt-Horizont. 92 cm unter Geländeoberfläche.

Die hier angegebene Einordnung wurde bei der Ansprache im Gelände vorgenommen (Dr. M. Kösel, Prof. Dr. E. Bibus, Exkursion des Arbeitskreises Paläopedologie der Deutschen Bodenkundlichen Gesellschaft, 8.-10.5.1997).

## B. Konstanten und Berechnungen

### B.1. Konstanten

Die physikalischen Konstanten, die in dieser Arbeit verwendet wurden, wurden der Arbeit von Groom (2000) entnommen. Insbesondere wurden verwendet:

$$\begin{aligned}c &= 299792458 \text{ m s}^{-1} \text{ (Lichtgeschwindigkeit)} \\h &= 6,62606876(52) \cdot 10^{-34} \text{ J s (Plank'sches Wirkungsquantum)} \\N_A &= 6,02214199(47) \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1} \text{ (Avogadro Konstante)}\end{aligned}\quad (\text{B.1})$$

Bei der Verwendung der Einheiten wurde versucht, den gesetzlichen Richtlinien zu folgen (siehe PTB (2000)). Bei der Verwendung der Begriffe Dosis und Dosisleistung sind immer die Energiedosis und Energiedosisleistung gemeint.

### B.2. Statistik

Um begriffliche Verwirrungen zu vermeiden, sind im folgenden die verwendeten statistischen Größen definiert, die im wesentlichen den Empfehlungen der ISO (1995) folgen: Mit der Formel

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \quad (\text{B.2})$$

wird der arithmetische Mittelwert  $\bar{x}$  der Messung berechnet. Dabei ist  $n$  die Anzahl der Meßwerte und  $x_i$  der  $i$ -te Meßwert. Die experimentelle Standardabweichung  $S$  wird bestimmt durch

$$S = \sqrt{\frac{1}{(n-1)} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \quad (\text{B.3})$$

Aus der experimentellen Standardabweichung  $S$  wird dann die Standardabweichung des Mittelwerts  $\bar{m}$  errechnet:

$$\bar{m} = \frac{S}{\sqrt{n}} \quad (\text{B.4})$$

In den Ergebnissen und den Diagrammen wird der Mittelwert und die Standardabweichung des Mittelwerts in der Form  $x = \bar{x} \pm \bar{m}$  angegeben.

## B. Konstanten und Berechnungen

Wird ein Ergebnis  $f(x_1 \dots x_n)$  aus mehreren fehlerbehafteten Größen  $x_1 \dots x_n$  errechnet, so ergibt sich der Gesamtfehler  $\bar{m}_f$  nach der Gauß'schen Fehlerfortpflanzung aus den Einzelfehlern  $\bar{m}_{x_1} \dots \bar{m}_{x_n}$  zu

$$\bar{m}_f = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left( \frac{\partial f}{\partial x_i} \right)^2 \bar{m}_{x_i}^2} \quad (\text{B.5})$$

### B.3. Wellenlängen- und Energiedarstellung

Aus historischen Gründen hat sich die Wellenlängendarstellung in der Lumineszenzspektrometrie (wie auch weitgehend in anderen Bereichen der optischen Spektroskopie (Schmidt, 1994)) eingebürgert. Sollen weitere Auswertungen an Spektren durchgeführt werden, wie zum Beispiel die Anpassung von Gauß-Kurven an das Spektrum, um es in seine einzelnen Emissionen zu zerlegen, muss das Spektrum in die Energiedarstellung überführt werden, da die Emissionspeaks nur in der Energiedarstellung gaußförmig sind. Die Energie ist unmittelbar mit der Schwingungsfrequenz verknüpft durch

$$E = h \cdot \nu \quad (\text{B.6})$$

mit dem Proportionalitätsfaktor  $h$ , dem Planck'schen Wirkungsquantum. Der Zusammenhang zwischen der Frequenz  $\nu$  und der Wellenlänge  $\lambda$  ist

$$\nu = \frac{c}{\lambda} \quad (\text{B.7})$$

mit der Lichtgeschwindigkeit  $c$ . Zusammengefasst ergibt sich damit

$$E = h \cdot \frac{c}{\lambda} \quad (\text{B.8})$$

Durch die  $1/x$  Beziehung zwischen Energie und Wellenlänge ist die Verzerrung des Gaußpeaks in der Wellenlängendarstellung bedingt. Setzt man die Werte aus Anhang B.1 ein, erhält man den häufig benutzten Umrechnungsfaktor

$$E = \frac{1240 \text{ eV nm}}{\lambda} \quad (\text{B.9})$$

## C. Auswertung von Lumineszenzspektren

### C.1. Überblick über die Auswerteprozedur

Die Auswertung der Messdaten, die mit dem Lumineszenzspektrometer erhoben werden, erfolgt in mehreren Schritten. Zu Beginn dieser Arbeit wurden für diese Schritte jeweils unterschiedliche Computerprogramme verwendet. Dies bedeutet zum einen einen erheblichen Zeitaufwand und zum anderen waren Fehler unvermeidlich. Im Rahmen dieser Arbeit wurde daher ein Programm entwickelt, das die gesamte Datenverarbeitung übernimmt und einen fertigen 2D oder 3D-Datensatz ausgibt, der nur noch mit geeigneten Programmen (für die Darstellung von 2D Spektren wurde in dieser Arbeit das Programm SigmaPlot 2001 (SPSS Science) und für 3D Spektren das Programm Surfer (Golden Software) verwendet) dargestellt werden muss. Die Entwicklung des Auswerteprogramms erfolgte mit dem Werkzeug TestPoint 3.0/4.0 (Keithley).

Zum besseren Verständnis sei erwähnt, dass z.B. IRSL- oder RL-Spektren meist als Einzelspektren aufgenommen werden und somit einen 2D-Datensatz (Intensität gegen Wellenlänge) ergeben. TL-Spektren hingegen werden als Spektrensatz aufgenommen, hier werden während der Messung in bestimmten Temperaturintervallen Einzelspektren aufgezeichnet und in einer Datei abgespeichert. Somit ergeben sich hier 3D-Datensätze (Intensität gegen Temperatur und Wellenlänge).

Folgende Schritte werden bei der Auswertung der Daten durchgeführt (siehe auch Abb. C.1):

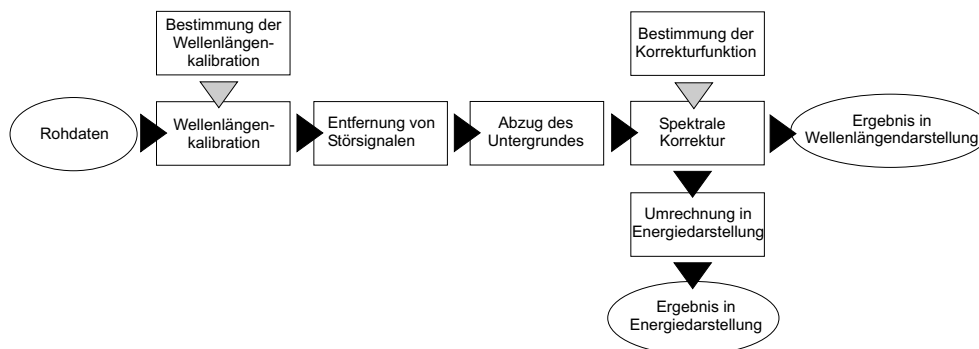


Abbildung C.1.: Überblick über die Auswertung von Lumineszenzspektren.

### C. Auswertung von Lumineszenzspektren

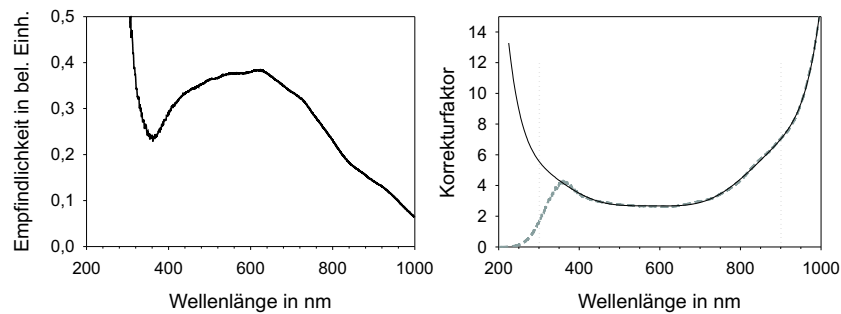


Abbildung C.2.: **Spektrale Empfindlichkeit ohne Filter.** Im linken Schaubild ist die Messung der spektralen Empfindlichkeit dargestellt. Rechts der Korrekturfaktor als inverse Empfindlichkeit. Grau gestrichelt der gemessene Wert, schwarz durchgezogen die angepasste und im unteren Wellenlängenbereich berechnete Funktion. Die gepunkteten vertikalen Linien geben den sinnvollen Messbereich an.

1. **Wellenlängenzuordnung.** Den einzelnen Kanälen des Detektors wird dabei eine Wellenlänge zugeordnet.
2. **Entfernung von Störsignalen.** Störsignale werden vor allem durch Myoneneinschläge aus der kosmischen Strahlung auf dem Detektor verursacht. Durch solch einen Einschlag wird der betroffene Pixel meist gesättigt. Die Zahl der Myoneneinschläge steigt mit der Zeit; daher sind Messungen mit langer Integrationszeit oft sehr stark betroffen. Die hohen Spitzen im Spektrum werden bei diesem Schritt entfernt.
3. **Subtraktion des Untergrundes.** Hier wird ein konstanter Untergrund, der im wesentlichen durch das thermische Detektorrauschen und das Ausleserausichen bestimmt ist, subtrahiert.
4. **Korrektur der spektralen Empfindlichkeit.** Mittels der experimentell bestimmten Korrekturfunktion (Anhang C.2) werden die Daten auf die spektrale Empfindlichkeit des Spektrometersystems korrigiert.
5. **Speicherung der Daten.** Schließlich werden die Daten abgespeichert und zuvor teilweise in Energiedarstellung überführt (z.B. zur Anpassung von Gauß-Funktionen zur Zerlegung des Spektrums in seine Einzelemissionen).

## C.2. Korrekturfaktoren für die spektrale Sensitivität

In diesem Abschnitt sind die experimentell bestimmten Empfindlichkeitskurven des Spektrometers mit verschiedenen Detektionsfiltern dargestellt. Die Erläuterung der Messprozedur ist in Kapitel 3.1.2 zu finden. In den Abbildungen C.2–C.4 sind die Empfindlichkeitskurven für unterschiedliche Detektionsfilter dargestellt. Daneben sind die Korrekturkurven (grau gestrichelt), d.h. die inversen Empfindlichkeitskurven zu sehen. Mit diesen müssen die gemessenen Spektren

## C.2. Korrekturfaktoren für die spektrale Sensitivität

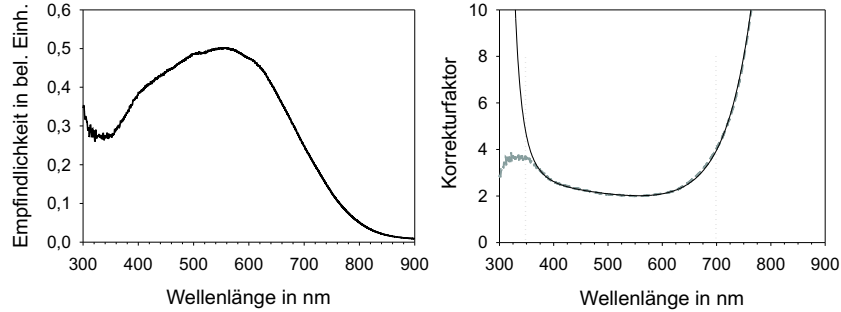


Abbildung C.3.: **Spektrale Empfindlichkeit mit Filter HA 3.** Im linken Schaubild ist die Messung der spektralen Empfindlichkeit dargestellt. Rechts der Korrekturfaktor als inverse Empfindlichkeit. Grau gestrichelt der gemessene Wert, schwarz durchgezogen die angepasste und im unteren Wellenlängenbereich berechnete Funktion. Die gepunkteten vertikalen Linien geben den sinnvollen Messbereich an. Der Hitzeschutzfilter HA 3 wird bei TL-Messungen in höheren Temperaturbereichen (über 300 °C) verwendet.

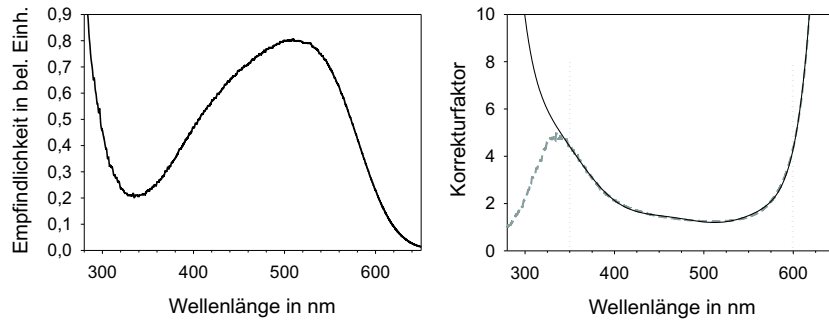


Abbildung C.4.: **Spektrale Empfindlichkeit mit Filter BG 39.** Im linken Schaubild ist die Messung der spektralen Empfindlichkeit dargestellt. Rechts der Korrekturfaktor als inverse Empfindlichkeit. Grau gestrichelt der gemessene Wert, schwarz durchgezogen die angepasste und im unteren Wellenlängenbereich berechnete Funktion. Die gepunkteten vertikalen Linien geben den sinnvollen Messbereich an. Der Glasfilter BG 39 wird bei IRSL-Messungen zur Abtrennung des Stimulationslichtes verwendet.

### C. Auswertung von Lumineszenzspektren

multipliziert werden, um die Ergebnisse auf die spektralen Eigenschaften des Spektrometers zu korrigieren. Um die numerische Auswertung zu erleichtern, wurden an die durch Messung bestimmten Korrekturkurven Funktionen (in den rechten Diagrammen, schwarz durchgehend) angepasst. So lässt sich zu jeder Wellenlänge der Korrekturfaktor einfach berechnen. Die Form und die Koeffizienten dieser Funktionen werden im folgenden explizit angegeben. Alle Messungen basieren auf Filterdicken von 3 mm

#### Messung ohne Filter

Die angepasste Korrekturfunktion für Messungen ohne Filter hat die in Formel C.1 dargestellte Form. Die zugehörigen Koeffizienten sind in Formel C.2 angegeben.

$$y = a - bx + cx^2 - dx^3 + ex^4 - fx^5 + gx^6 - hx^7 + ix^8 - jx^9 + kx^{10} \quad (\text{C.1})$$

$$\begin{aligned} a &= 1.18399 \cdot 10^3 \\ b &= 1.97415 \cdot 10^1 \\ c &= 1.45338 \cdot 10^{-1} \\ d &= 6.16833 \cdot 10^{-4} \\ e &= 1.66801 \cdot 10^{-6} \\ f &= 3.00534 \cdot 10^{-9} \\ g &= 3.66556 \cdot 10^{-12} \\ h &= 3.00601 \cdot 10^{-15} \\ i &= 1.60077 \cdot 10^{-18} \\ j &= 5.06135 \cdot 10^{-22} \\ k &= 7.32310 \cdot 10^{-26} \end{aligned} \quad (\text{C.2})$$

#### Messung mit Filter HA 3

Die angepasste Korrekturfunktion für Messungen mit Filter HA 3 hat die in Formel C.3 dargestellte Form. Die zugehörigen Koeffizienten sind in Formel C.4 angegeben.

$$y = \frac{a - cx^{0.5} + ex - gx^{1.5} + ix^2}{1 - bx^{0.5} + dx - fx^{1.5} + hx^2} \quad (\text{C.3})$$

$$\begin{aligned} a &= 5.12061 \cdot 10^0 \\ b &= 1.82520 \cdot 10^{-1} \\ c &= 9.55587 \cdot 10^{-1} \end{aligned}$$



## C.2. Korrekturfaktoren für die spektrale Sensitivität

Tabelle C.1.: **Sinnvolle Detektionsbereiche.** In der Tabelle sind die sinnvollen Detektionsbereiche des Spektrometers für die unterschiedlichen Filter angegeben. Im Einzelfall kann von diesen Werten leicht abgewichen werden.

Filter	Anwendungsbereich	Wellenlängenbereich in nm
ohne	RL, TL bis etwa 300 °C	300-900
HA 3	TL über 300 °C	350-700
BG 39	IRSL	350-600

$$\begin{aligned}
 d &= 1.21922 \cdot 10^{-2} \\
 e &= 6.63047 \cdot 10^{-2} \\
 f &= 3.52646 \cdot 10^{-4} \\
 g &= 2.02657 \cdot 10^{-3} \\
 h &= 3.73436 \cdot 10^{-6} \\
 i &= 2.30574 \cdot 10^{-5}
 \end{aligned} \tag{C.4}$$

### Messung mit Filter BG 39

Die angepasste Korrekturfunktion für Messungen mit Filter BG 39 hat die in Formel C.5 dargestellte Form. Die zugehörigen Koeffizienten sind in Formel C.6 angegeben.

$$y = a - bx + cx^2 - dx^3 + ex^4 - fx^5 + gx^6 - hx^7 + ix^8 \tag{C.5}$$

$$\begin{aligned}
 a &= 1.00220 \cdot 10^5 \\
 b &= 1.84337 \cdot 10^3 \\
 c &= 1.47308 \cdot 10^1 \\
 d &= 6.67874 \cdot 10^{-2} \\
 e &= 1.87902 \cdot 10^{-4} \\
 f &= 3.35956 \cdot 10^{-7} \\
 g &= 3.72846 \cdot 10^{-10} \\
 h &= 2.34884 \cdot 10^{-13} \\
 i &= 6.43253 \cdot 10^{-17}
 \end{aligned} \tag{C.6}$$

### Sinnvolle Detektionsbereiche

In den Abbildungen C.2 bis C.4 ist ein deutliches Ansteigen der Korrekturfunktion bei niedrigen und hohen Wellenlängen zu erkennen. Dies bedeutet, dass die Empfindlichkeit des Spektrometers in diesen Bereich drastisch abnimmt. Dies

### C. Auswertung von Lumineszenzspektren

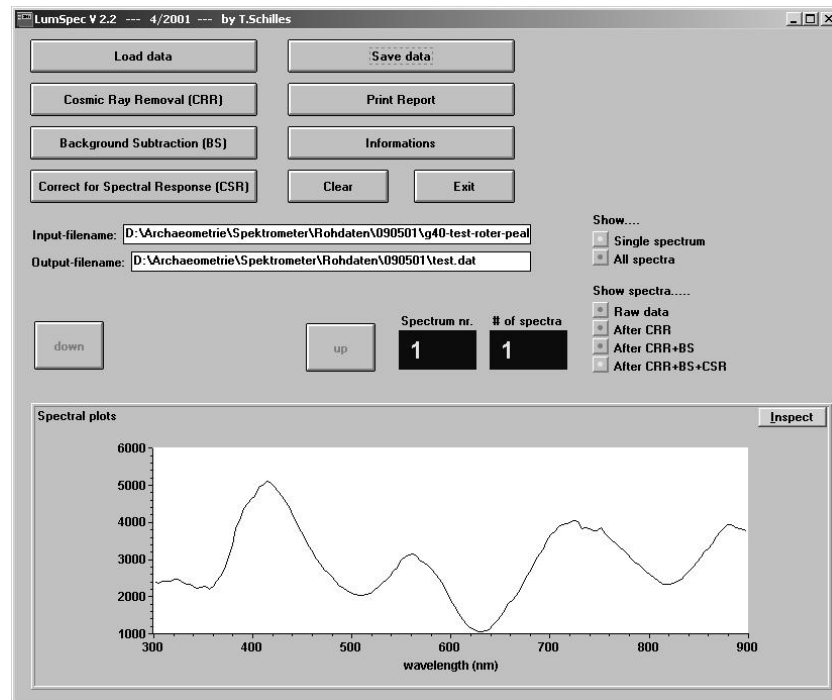


Abbildung C.5.: **LumSpec - Hauptfenster.** Vom Hauptfenster werden nacheinander alle Bearbeitungsschritte aufgerufen.

hat zur Folge, dass z.B. geringe Schwankungen im Untergrundrauschen oder Einflüsse von Streustrahlung durch die sehr hohen Korrekturfaktoren verstärkt werden. Dadurch entstehen Artefakte in den ausgewerteten Spektren, die unerwünscht sind und zu Fehlinterpretationen führen können. Deshalb sollte der Spektralbereich, der zur Detektion herangezogen wird, auf einen Bereich beschränkt werden, in dem die Korrekturfunktion noch möglichst waagrecht verläuft. In den Abbildungen sind daher sinnvolle Detektionsbereiche eingezeichnet, die aus Erfahrungen bei Messungen und Auswertungen entstanden sind (siehe auch Tabelle C.1). In Einzelfällen, etwa wenn die Probe ein sehr starkes Signal in den Randbereichen aufweist, kann von diesen Vorgaben abgewichen werden.

### C.3. Das Auswerteprogramm LumSpec

Das Auswertungsprogramm für Lumineszenzspektren LumSpec wurde im Rahmen dieser Arbeit entwickelt und programmiert und liegt in der Version 2.2 vor. Es dient dazu, rohe Datenfiles im WinSpec-Format (das Programm WinSpec dient der Aufnahme der Spektren und gehört zum Lieferumfang der CCD-Kamera) auszuwerten und schließlich ASCII-Dateien auszugeben, die nur noch graphisch aufbereitet werden müssen.

Vom Hauptfenster (Abb. C.5) aus gelangt man zu den einzelnen Verarbeitungsschritten. Ist ein Schritt abgearbeitet, gelangt man zurück in dieses Haupt-

### C.3. Das Auswerteprogramm LumSpec

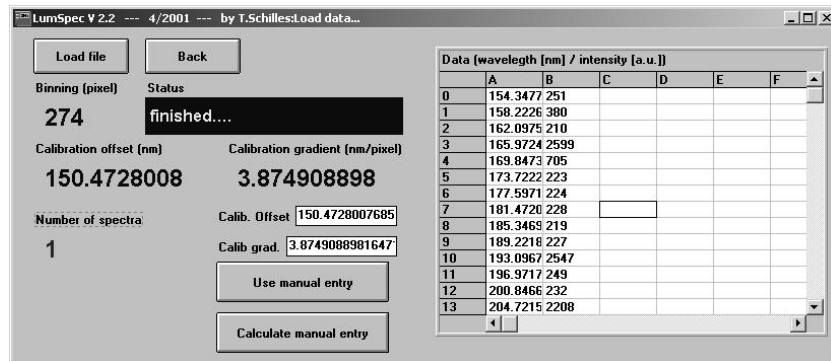


Abbildung C.6.: **LumSpec - Daten laden.** Im Fenster ‚Datei-laden‘ lassen sich Spektrendateien öffnen, ebenso kann die Kalibration geprüft werden.

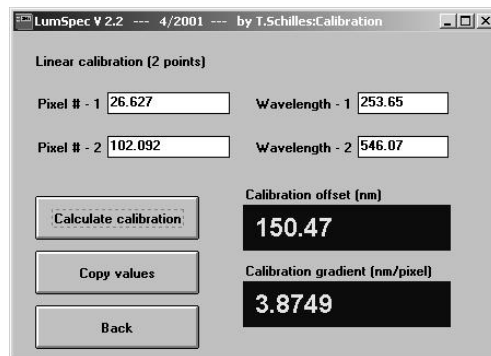


Abbildung C.7.: **LumSpec - Manuelle Kalibration.** Hier kann gegebenenfalls manuell eine Wellenlängenkalibration errechnet werden.

fenster und kann dort die Spektren (einzeln oder im Falle von 3D-Datensätze alle Spektren) im Diagramm überprüfen.

Ein erster Schritt ist das Laden der Ausgangsdatei (Abb. C.6). Im entsprechenden Programmfenster werden die Rohdaten in einer Tabelle dargestellt und zugleich Informationen über die Gesamtzahl der Spektren in der Datei und vor allem über die von WinSpec verwendete Wellenlängenkalibration angezeigt. Sollte die in der Datei gespeicherte Kalibration nicht korrekt sein, lässt sich über ein weiteres Dialogfenster eine lineare Kalibration auf der Basis der Messung des Quecksilber-Linienspektrums der Hg(Ar)-Lampe berechnen und übernehmen (Abb. C.7).

In einem zweiten Schritt sollen die Störsignale, die durch Einschläge von kosmischen Myonen auf den CCD-Chip verursacht werden, beseitigt werden (Abb. C.9). In der Bildverarbeitung existieren verschiedene Algorithmen, um diese Signale zu entfernen. Da es sich bei diesen Störungen um einzelne Pixel mit stark überhöhtem oder gesättigtem Signal handelt, gelingt die Beseitigung dieser Pixel im Falle der Bildverarbeitung (d.h. wenn die Pixel des Chips nicht zusammengefasst werden) recht einfach. Ein gängiger Algorithmus berechnet für

### C. Auswertung von Lumineszenzspektren

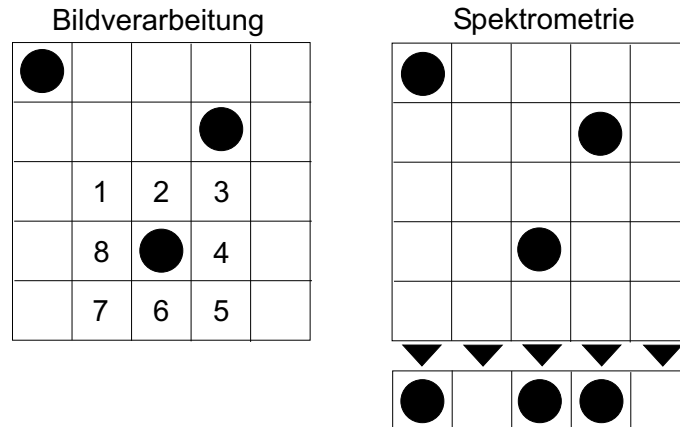


Abbildung C.8.: **Einfluss von Störsignalen.** Durch die spaltenweise Zusammenfassung von Pixeln sind die Störpixel schwerer zu entfernen als bei Anwendungen in der Bildverarbeitung, bei denen alle Pixel einzeln ausgelesen werden.

jeden Pixel des Bildes den Median der acht umliegenden Pixel und ersetzt den Pixelwert durch diesen Median (Abb. C.8). Alternativ lässt sich eine Schranke für die Differenz zwischen Pixelwert und Median der umliegenden Pixel angeben. Liegt die Differenz unterhalb der Schranke wird der Originalwert beibehalten, ansonsten durch den Median ersetzt. Dieses Verfahren funktioniert auch dann noch, wenn wenige der angrenzenden Pixel ebenfalls Störpixel sind.

Leider lässt sich dieser sehr elegante und effiziente Algorithmus nicht auf die spektroskopische Anwendung übertragen. Durch die zeilenweise Zusammenfassung der Pixel gibt es zwei Effekte. Zum einen ist die Wahrscheinlichkeit für zwei aufeinanderfolgende Störpixel durch die zeilenweise Summation stark erhöht. Zum anderen besitzt jeder Pixel nur einen linken und rechten Nachbar. Daher lässt sich die Medianbildung nicht anwenden, es muss der Mittelwert aus linkem und rechtem Pixel berechnet werden. Wenn dabei einer der Nachbarpixel ein Störpixel ist, scheitert das Verfahren.

Es wurde für das Programm LumSpec deshalb ein neuer Algorithmus entwickelt. Für Korrektur des  $n$ -ten Pixels wird an die Punkte  $n - k$  bis  $n - 1$  ein Polynom zweiter Ordnung angepasst (Methode der kleinsten Fehlerquadrate). Diese Funktion wird bis auf den  $x$ -Wert des  $n$ -ten Pixels extrapoliert. Dann wird die Differenz zwischen Pixelwert und Wert der angepassten Funktion gebildet. Liegt diese Differenz unterhalb einer Schranke  $s$ , so wird der Originalwert beibehalten, liegt die Differenz über  $s$ , wird der Pixelwert durch den Wert der Funktion ersetzt. Dieser Verfahren läuft über das gesamte Spektrum. Dabei gehen die ersten  $k$  Punkte verloren. Schließlich erlaubt das Programm eine Glättung des Spektrums, dabei wird ein Mittelwert über  $m$  Punkte gebildet, wobei der Pixel  $n$  im Zentrum liegt. Der Pixelwert wird dann durch den Mittelwert ersetzt. Bei diesem Verfahren kommt es, speziell an den Peak-Spitzen im Spektrum, zu einer Absenkung der Kurve, so dass dieses Glättungsverfahren nur bei solchen

### C.3. Das Auswerteprogramm LumSpec

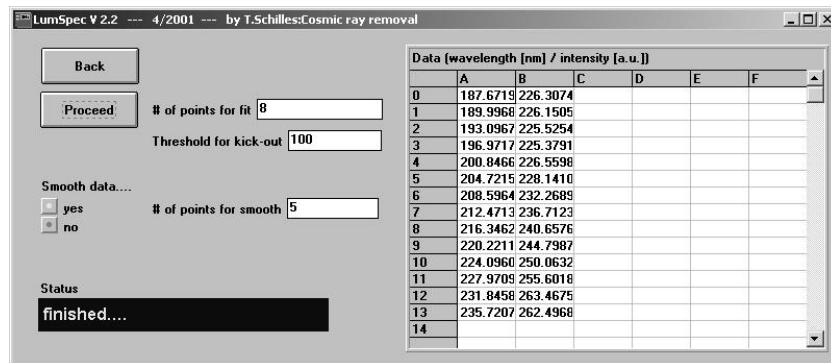


Abbildung C.9.: **LumSpec - Entfernung von Störsignalen.** Insbesondere die kosmische Strahlung sorgt für Störsignale in den Spektren, die hier entfernt werden können.

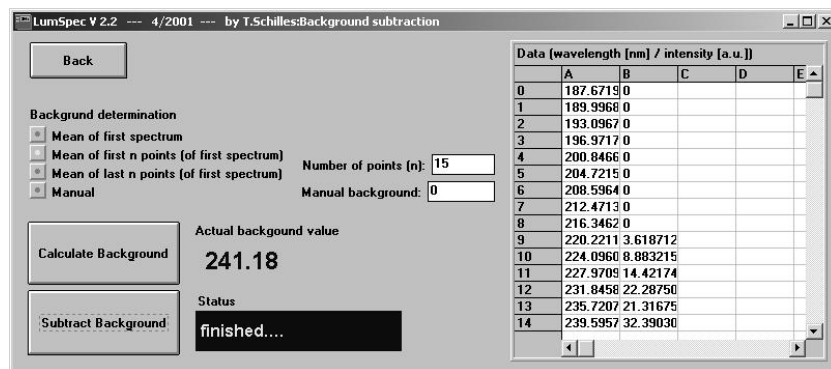


Abbildung C.10.: **LumSpec - Subtraktion des Untergrundes.** Vor der Subtraktion kann der Untergrund auf verschieden Arten bestimmt oder manuell eingegeben werden.

Messungen eingesetzt werden kann, bei denen die Peakhöhe nicht quantitativ ausgewertet werden soll.

Nächster Punkt der Auswertung ist der Untergrundabzug (Abb. C.10). Hier bietet das Programm die Möglichkeit der Berechnung des Untergrundes an. Speziell für TL-Spektren bietet sich die Option der Untergrundberechnung (d.h. Mittelwertbildung) aus dem ersten gemessenen Spektrum an, da zu Beginn der TL Messung aufgrund der niederen Temperaturen meist keine Lumineszenz beobachtet wird. Schließlich lässt sich der Untergrund als Mittelwert der ersten oder letzten  $n$  Punkte eines Spektrums berechnen, ebenso kann der Wert manuell eingegeben werden.

Die spektrale Empfindlichkeit des Spektrometers wird im nächsten Schritt korrigiert (Abb. C.11). Die Korrekturfunktion aus Kapitel C.2 für den jeweils verwendeten Detektionsfilter wird dabei auf die Daten angewendet. Der auszuwertende Spektralbereich lässt sich einstellen. Schließlich lässt sich ein maximaler Wert für die Intensität angeben. Alle Pixel die einen höheren Wert besitzen,

### C. Auswertung von Lumineszenzspektren

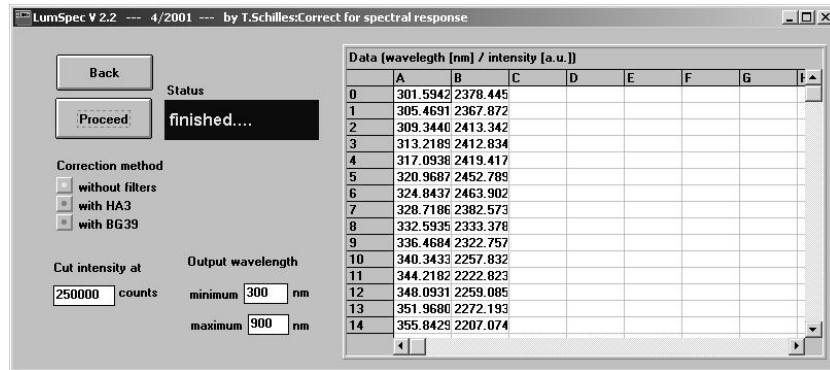


Abbildung C.11.: **Korrektur der spektralen Empfindlichkeit.** Hier wird die Korrekturfunktion abhängig vom verwendeten Filter auf die Daten angewendet.

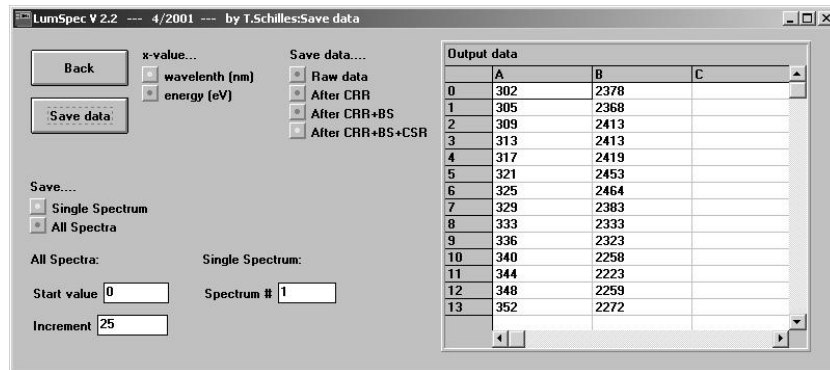


Abbildung C.12.: **Speichern der Daten.** Die Daten können in Energie- oder Wellenlängendarstellung gespeichert werden, bei Serienspektren können Einzelspektren separat gespeichert werden.

werden gleich diesem Wert gesetzt. Dies hat z.B. bei TL-Spektren den Vorteil, dass die meist sehr hohe Wärmestrahlung bei höheren Temperaturen abgeschnitten wird und somit im Diagramm die relevanten Bereiche des Spektrums noch zu erkennen sind.

Im Programmfenster ‚Speichern‘ (Abb. C.12) lassen sich die Daten abspeichern. Der Benutzer kann die Daten jedes Korrekturschrittes auswählen. Ebenso hat er die Wahl zwischen der Speicherung in Wellenlängen oder Energiedarstellung. Bei Serienspektren können hier die Inkrementwerte für die dritte Dimension angegeben werden, z.B. bei TL-Spektren die Temperaturdifferenz zwischen zwei folgenden Spektren. Es gibt aber auch die Möglichkeit, einzelne Spektren aus Serienspektren getrennt abzuspeichern.

Unter dem Punkt Drucken (Abb. C.13) können Pobenbezeichnung und Anmerkungen eingegeben werden. Das Programm druckt dann einen Bericht, in dem alle bei der Korrektur verwendeten Parameter verzeichnet sind. Ein Spektrum wird in einem Diagramm auf dem Ausdruck dargestellt.

### C.3. Das Auswerteprogramm LumSpec

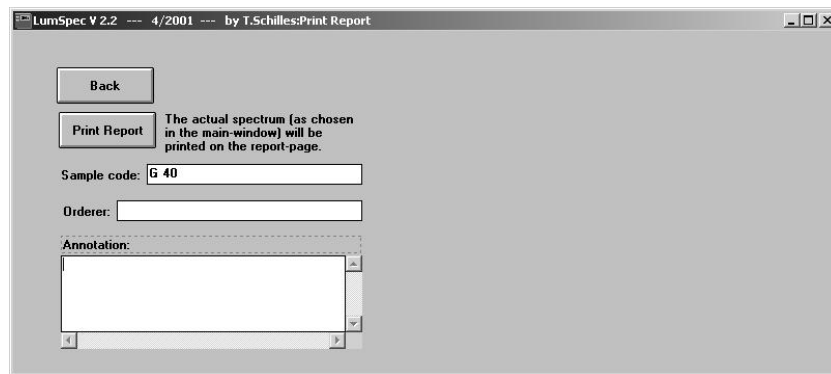


Abbildung C.13.: **Drucken der Parameter.** Auf dem Ausdruck sind alle Parameter der Auswertung festgehalten. Dies erlaubt reproduzierbare Auswertungen.





## D. Messergebnisse

### D.1. Lumineszenzspektren

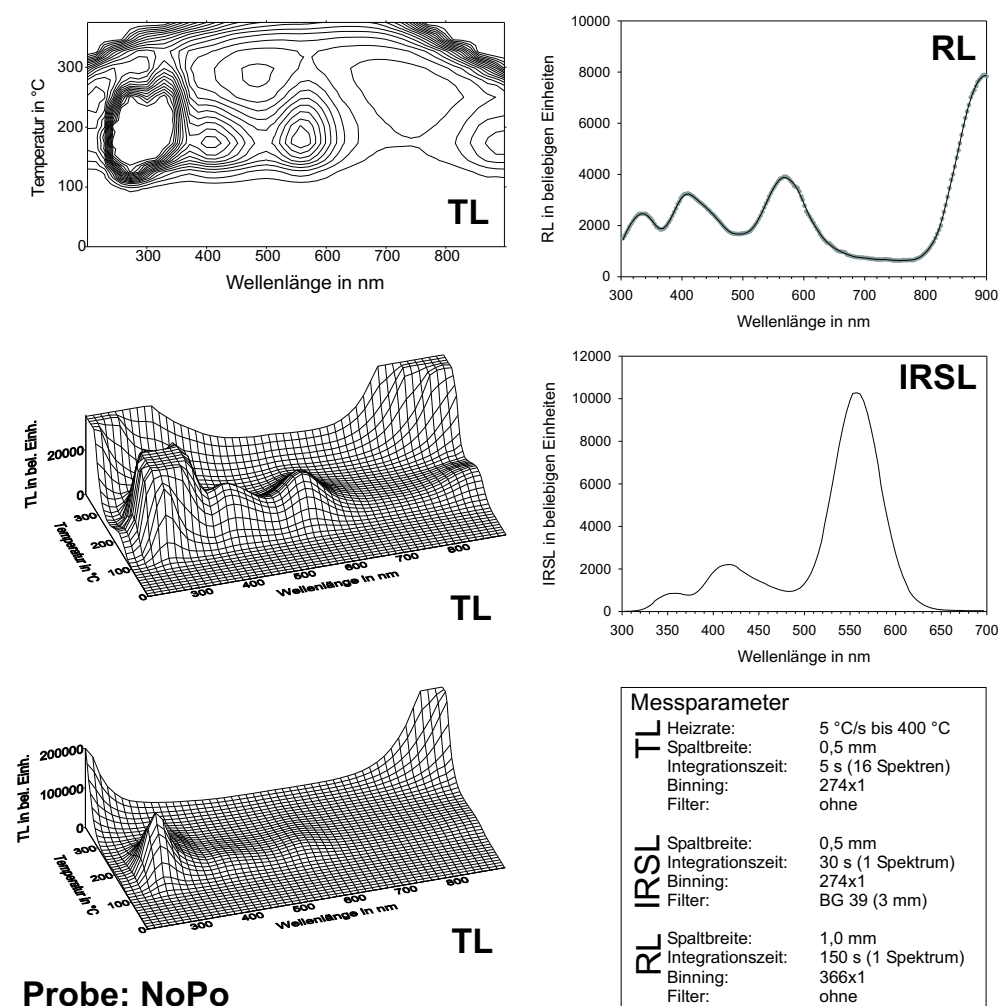
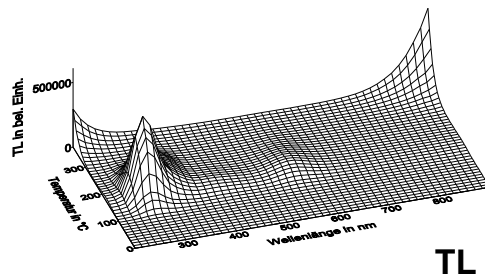
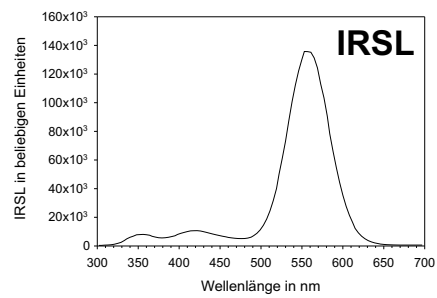
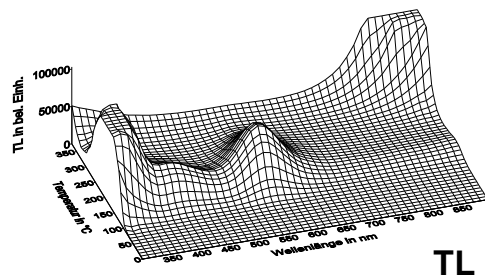
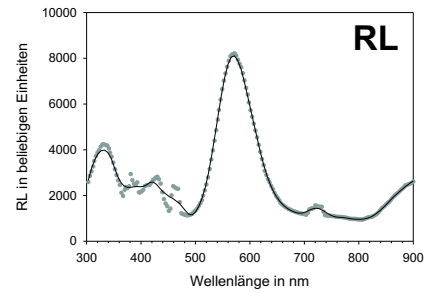
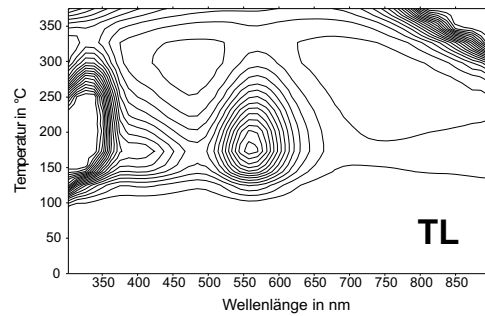


Abbildung D.1.: Spektren der Probe NoPo.

Weitere Erläuterungen zu den Spektren sind in Kapitel 5.1.3 zu finden.

## D. Messergebnisse



Probe: NoSo

### Messparameter

TL	Heizrate:	5 °C/s bis 400 °C
	Spaltbreite:	0,5 mm
	Integrationszeit:	5 s (16 Spektren)
	Binning:	274x1
IRSL	Filter:	ohne
	Spaltbreite:	0,5 mm
	Integrationszeit:	30 s (1 Spektrum)
	Binning:	274x1
RL	Filter:	BG 39 (3 mm)
	Spaltbreite:	1,0 mm
	Integrationszeit:	150 s (1 Spektrum)
	Binning:	366x1
	Filter:	ohne

Abbildung D.2.: Spektren der Probe NoSo.

## D.1. Lumineszenzspektren

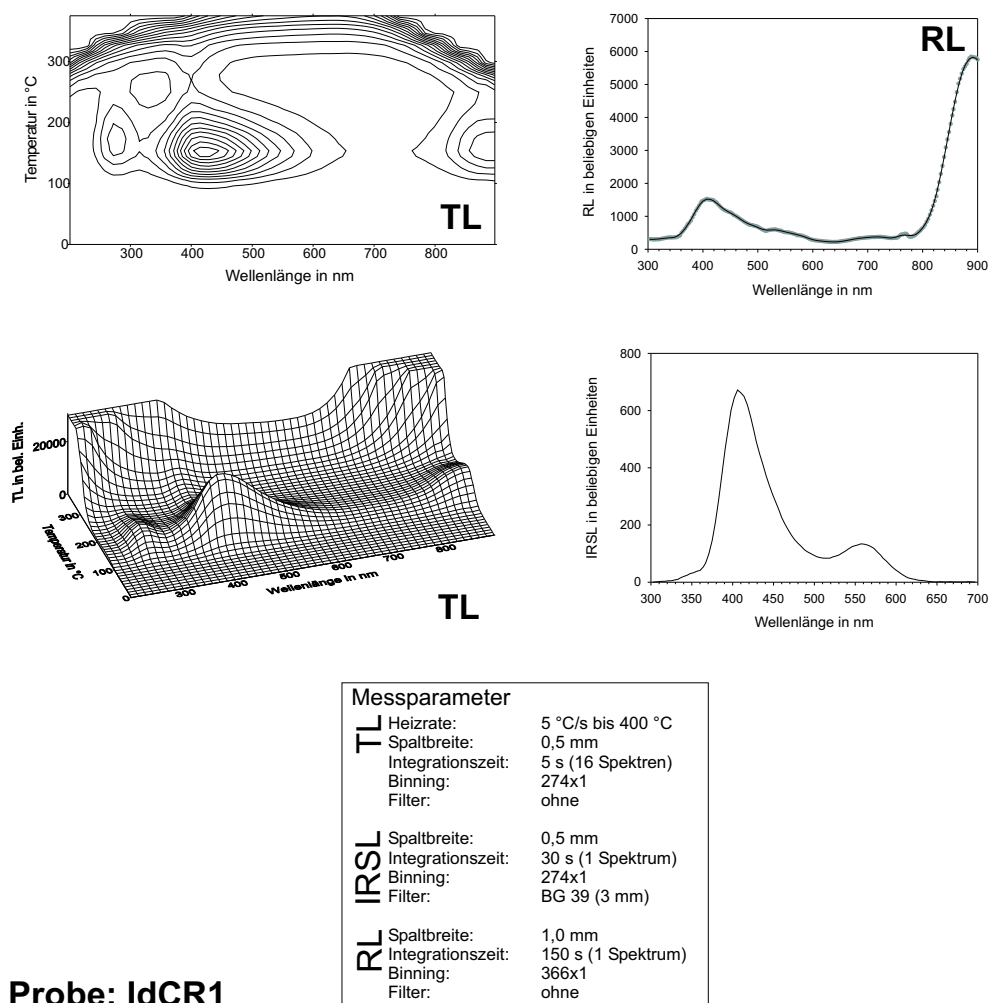


Abbildung D.3.: Spektren der Probe IdCR1.

## D. Messergebnisse

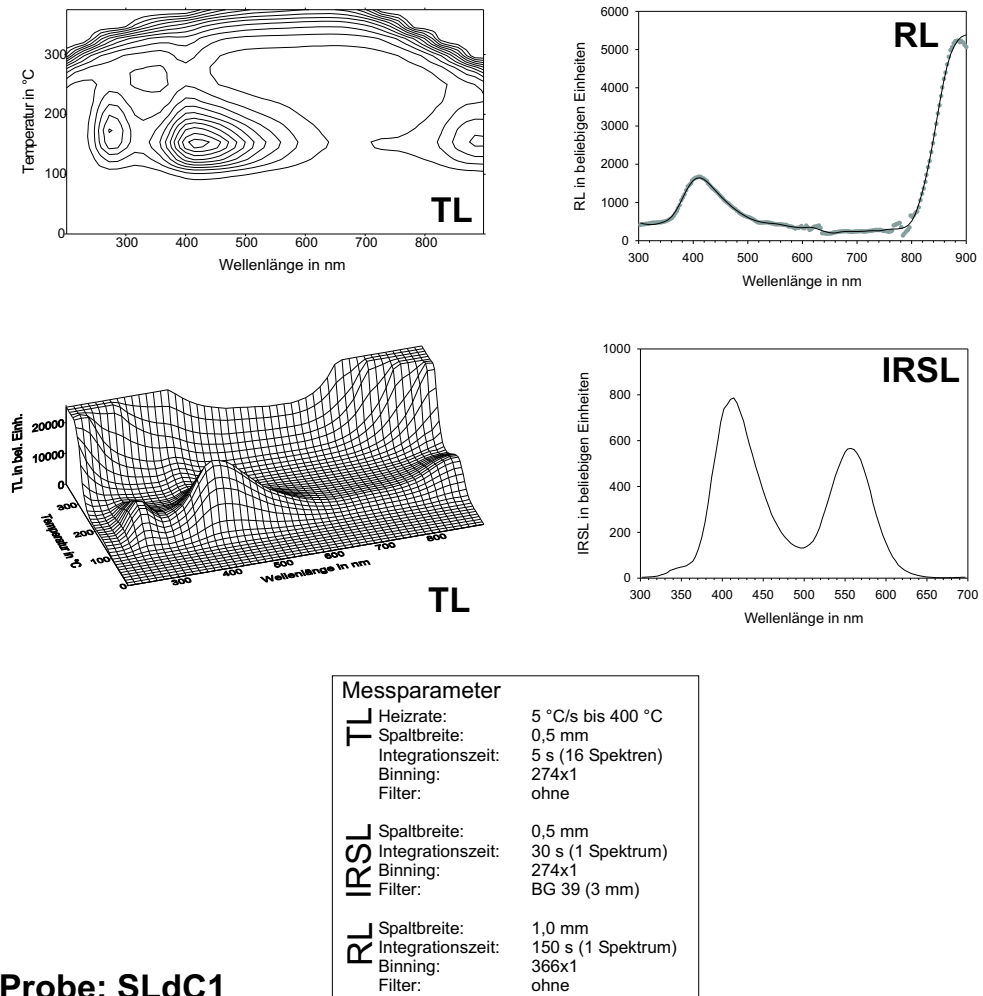


Abbildung D.4.: Spektren der Probe SLdC1.

## D.2. Verhalten des roten Peaks

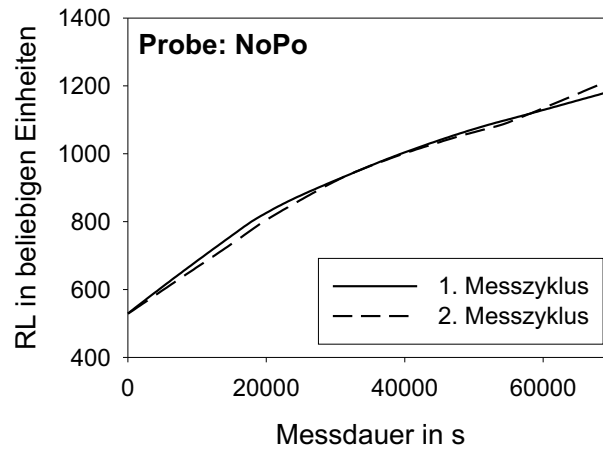


Abbildung D.5.: **Verhalten des roten Peaks.** Hier für die Probe NoPo. Informationen zu den Messbedingungen siehe Kapitel 5.3.3.

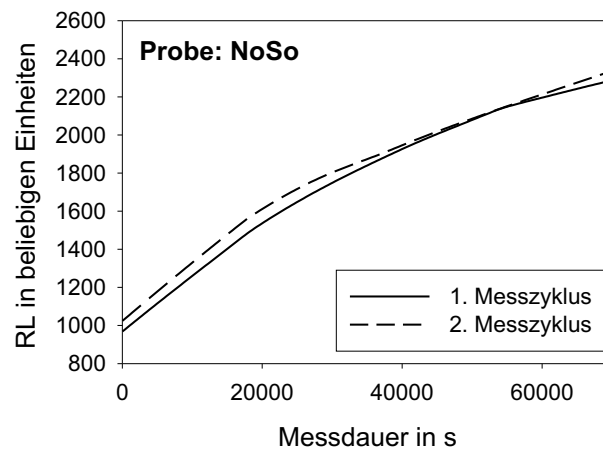


Abbildung D.6.: **Verhalten des roten Peaks.** Hier für die Probe NoSo. Informationen zu den Messbedingungen siehe Kapitel 5.3.3.



# Literaturverzeichnis

- Adamiec, G. und M. Aitken (1998). Dose-rate conversion factors: Update. *Ancient TL* 16, 37–50.
- Aitken, M. und S. Bowman (1975). Thermoluminescence dating: Assessment of alpha particle contribution. *Archaeometry* 17, 132–138.
- Aitken, M. J. (1985). *Thermoluminescence Dating*. London: Academic Press.
- Aitken, M. J. (1998). *An Introduction to Optical Dating*. Oxford: Oxford University Press.
- Berger, M. J., J. S. Coursey, und M. A. Zucker (1999). ESTAR, PSTAR, and ASTAR: Computer programs for calculating stopping-power and range tables for electrons, protons, and helium ions (Version 1.21). [Online]. Available: <http://physics.nist.gov/Star> [2000, November 28]. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD, USA.
- Berger, M. J., J. H. Hubbell, S. M. Seltzer, J. S. Coursey, und D. S. Zucker (2001). XCOM: Photon cross section database (version 1.2). [Online]. Available: <http://physics.nist.gov/xcom> [2001, September 13]. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD, USA.
- Blasse, G. und B. Grabmaier (1994). *Luminescent Materials*. Heidelberg: Springer.
- Bøtter-Jensen, L. (1997). Luminescence techniques: Instrumentation and methods. *Radiation Measurements* 27, 749–768.
- Bulur, E. (1996). An alternative technique for optically stimulated (OSL) experiment. *Radiation Measurements* 26, 701–709.
- Bulur, E. und H. Y. Göksu (1999). Infrared (IR) stimulated luminescence from feldspar with linearly increasing excitation light intensity. *Radiation Measurement* 30, 505–512.
- Chen, R. und S. W. S. McKeever (1997). *Theory of Thermoluminescence and Related Phenomena*. Singapore: World Scientific Publishing.
- Duller, G. A. T. (1992). *Luminescence Chronology of Raised Marine Terraces, South-West North Island, New Zealand*. Dissertation, Universität von Wales, Aberystwyth.

## Literaturverzeichnis

- Flemming, S. (1966). Study of thermoluminescence of crystalline extracts from pottery. *Archaeometry* 9, 170–173.
- Fuchs, M. (2001). *Die OSL-Datierung von Archäosedimenten zur Rekonstruktion anthropogen bedingter Sedimentumlagerung*. Dissertation, Universität Heidelberg.
- Godfrey-Smith, D. I., D. J. Huntley, und W.-H. Chen (1988). Optical dating studies of quartz and feldspar sediment extracts. *Quaternary Science Reviews* 7, 373–380.
- Greilich, S. und G. A. Wagner (2002). Surface dating - dose reconstruction and thermal effect at granite surface. (*in Vorbereitung*).
- Groom, D., E. (2000). Review of particle physics. *European Physical Journal C* 15, 1–878.
- Hütt, G., I. Jaek, und J. Tchonka (1988). Optical dating: K-Feldspars optical response stimulation spectra. *Quaternary Science Reviews* 7, 381–385.
- ISO (1995). *Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement*. Genf: International Organization for Standardization.
- Kadereit, A. (2000). *IR-OSL-datierte Kolluvien als Archive zur Rekonstruktion anthropogen bedingter Landschaftsänderungen*. Dissertation, Universität Heidelberg.
- Kalchgruber, R. (2001).  *$\alpha$ - $Al_2O_3:C$  als Dosimeter zur Bestimmung der Dosisleistung bei der Lumineszenzdatierung*. Dissertation, Universität Heidelberg.
- Knoll, G. F. (1989). *Radiation Detection and Measurement*. New York: John Wiley & Sons.
- Kösel, M. (1996). *Der Einfluß von Relief und periglazialen Deckschichten auf die Bodenausbildung im mittleren Rheingletschergebiet von Oberschwaben*. Dissertation, Universität Tübingen.
- Krbetschek, M. R., T. Trautmann, A. Dietrich, und W. Stolz (2000). Radioluminescence dating of sediments: Methodological aspects. *Radiation Measurements* 32, 493–498.
- Lang, A., S. Lindauer, R. Kuhn, und G. A. Wagner (1996). Procedures used for optically and infrared stimulated luminescence dating of sediments in Heidelberg. *Ancient TL* 14, 7–11.
- Marazuev, Y. A., A. B. Brik, und V. Y. Degoda (1995). Radioluminescent dosimetry of  $\alpha$ -quartz. *Radiation Measurements* 24, 565–569.
- Mauz, B. und U. Hassler (2000). Luminescence chronology of late pleistocene raised beaches in southern Italy: New data relative sea-level changes. *Marine Geology* 170, 187–203.



- McKeever, S. W. S. (1985). *Thermoluminescence of Solids*. Cambridge University Press.
- Mejdahl, V. (1979). Thermoluminescence dating: Beta-dose attenuation in quartz grains. *Archaeometry* 21, 61–72.
- Mejdahl, V. und M. Winther-Nielsen (1982). TL dating based on feldspar inclusions. *PACT* 6, 426–437.
- Murray, A. S. und A. G. Wintle (2000). Luminescence dating of quartz using an improved single-aliquot regenerative-dose protocol. *Radiation Measurements* 32, 57–73.
- Nickel, E. (1980). *Grundwissen Mineralogie, Teil 1: Grundkurs*. Thun: Ott Verlag.
- Poolton, N. R. J., L. Bøtter-Jensen, und O. Johnsen (1995). Thermo-optical properties of optically stimulated luminescence in feldspars. *Radiation Measurements* 24, 531–534.
- Poolton, N. R. J., E. Bulur, J. Wallinga, L. Bøtter-Jensen, A. S. Murray, und F. Willumsen (2001). An automated system for the analysis of variable temperature radioluminescence. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 179, 575–584.
- Prescott, J. und J. Hutton (1994). Cosmic ray contribution to dose rates for luminescence and ESR dating: Large depths and long-term time variations. *Radiation Measurements* 23, 497–500.
- PTB (2000). *Die gesetzlichen Einheiten in Deutschland*. Braunschweig: Physikalisch Technische Bundesanstalt.
- Ramdohr, P. und H. Strunz (1978). *Klockmanns Lehrbuch der Mineralogie*. Stuttgart: Enke.
- Richardson, C. A. (1994). Effects of the bleaching on the sensitivity to dose of the infrared-stimulated luminescence of potassium-rich feldspars from Ynyslas, Wales. *Radiation Measurements* 23, 587–591.
- Riehl, N. (1971). *Einführung in die Lumineszenz*. München: Karl Thiemig KG.
- Rieser, U. (1999). *Spektrometrie an Feldspäten als Beitrag zur Aufklärung physikalischer Grundlagen der Lumineszenz-Datierungstechnik*. Dissertation, Universität Heidelberg.
- Rieser, U., J. Habermann, und G. A. Wagner (1999). Luminescence dating: A new high sensitivity TL/OSL emission spectrometer. *Quaternary Geochronology* 18, 311–315.
- Schilles, T. (1998). Entwicklung und Anwendung einer Technik zur Single Aliquot Datierung mittels Optisch Stimulierter Lumineszenz. Diplomarbeit, Universität Heidelberg.

## Literaturverzeichnis

- Schilles, T. (2001). SigmaPlot 2000 - Softwarerezeension. *Physikalische Blätter*.
- Schilles, T. und J. Habermann (2000). Radioluminescence dating: The IR emission of feldspar. *Radiation Measurements* 32, 679–683.
- Schilles, T., R. Kalchgruber, und G. A. Wagner (2002). Infrared-radioluminescence of potassium feldspar: Properties and applications. *Radiation Protection Dosimetry (eingereicht)*.
- Schilles, T., N. R. J. Poolton, E. Bulur, L. Bøtter-Jensen, A. S. Murray, G. M. Smith, P. C. Riedi, und G. A. Wagner (2001). A multi-spectroscopic study of luminescence sensitivity changes in natural quartz induced by high-temperature annealing. *Journal of Physics D: Applied Physics* 34, 722–731.
- Schmidt, W. (1994). *Optische Spektroskopie*. Weinheim: VCH.
- Schröcke, H. und K.-L. Weiner (1981). *Mineralogie*. Berlin: de Gruyter.
- Trautmann, T. (1999). *Radiolumineszenzuntersuchungen an Feldspat*. Dissertation, Technische Universität Bergakademie Freiberg.
- Trautmann, T., A. Dietrich, und W. Stolz (1999). Radioluminescence dating: A new tool for quaternary geology and archaeology. *Naturwissenschaften* 86, 441–444.
- Trautmann, T., M. R. Krbetschek, A. Dietrich, und W. Stolz (1998). Investigations of feldspar radioluminescence: Potential for a new dating technique. *Radiation Measurements* 29, 421–425.
- Trautmann, T., M. R. Krbetschek, A. Dietrich, und W. Stolz (1999). Feldspar radioluminescence: A new dating method and its physical background. *Journal of Luminescence* 85, 45–48.
- Trautmann, T., M. R. Krbetschek, A. Dietrich, und W. Stolz (2000). The basic principle of radioluminescence dating and a localized transition model. *Radiation Measurements* 32, 487–492.
- Tuli, J. K. (1997). *Nuclear Data Sheet* 81, 579.
- Turekian, K. K. (1972). *Chemistry of the Earth*. New York: Holt, Rinehart and Winston.
- Wagner, G. A. (1998). *Age Determination of Young Rocks and Artifacts*. Heidelberg: Springer.
- Warren, S. E. (1978). Thermoluminescence dating of pottery: An assessment of the dose-rate from rubidium. *Archaeometry* 20, 71–72.
- Woda, C., T. Schilles, U. Rieser, A. Mangini, und G. A. Wagner (2002). Point defects and the blue emission in fired quartz at high doses: A comparative luminescence and EPR study. *Radiation Protection Dosimetry (eingereicht)*.

- Zimmerman, D. (1971). Thermoluminescence dating using fine grains from pottery. *Archaeometry* 13, 29–52.
- Zimmerman, D. W. (1967). Thermoluminescence from fine-grains from ancient pottery. *Archaeometry* 10, 26–28.



## Danksagung

Herrn Prof. Dr. G. A. Wagner möchte ich für die Betreuung meiner Arbeit danken. Er ließ mir bei der Wahl des Themas und der konkreten Ausgestaltung der Arbeit große Freiheit und ermöglichte mir dadurch die Bearbeitung des spannenden und aktuellen Themas. Seinem Interesse an den physikalischen Grundlagen der Lumineszenzdatierung und der steten Unterstützung neuer experimenteller Methoden ist es zu verdanken, dass ich die Arbeit in der vorliegenden Form realisieren konnte.

Herrn Prof. Dr. K. Roth danke ich für sein Interesse an meiner Arbeit und die daraus resultierende Übernahme der Betreuung von Seiten der Universität Heidelberg und die Bereitschaft zur Erstellung des Zweitgutachtens.

Die finanzielle Förderung der Heidelberger Akademie der Wissenschaften machte diese Arbeit erst möglich, ebenso wie die Gastfreundschaft des Direktoriums des Max-Planck-Instituts für Kernphysik, dem ich für die Möglichkeit der Nutzung der vielfältigen Einrichtungen und Angebote des Instituts danken möchte. Besonders danken möchte ich Herrn Mallinger und Herrn Schlicksupp als Retter in allen Fragen der Feinmechanik.

Herrn Prof. Dr. R. Altherr, Herrn Dr. H.-P. Meyer und Frau I. Glass vom Mineralogischen Institut der Universität Heidelberg danke ich für die Möglichkeit, Messungen am Rasterelektronenmikroskop ausführen zu dürfen.

Frau Dr. Annette Kadereit danke ich für die Proben zur Dosisbestimmung, darunter die besten Feinkornproben zwischen Schwarzwald und Neckar. Ebenso Dank an Frau Dr. Barbara Mauz für die Versorgung mit Probenmaterial. Herr Dipl. Phys. Steffen Greulich gab mir die Möglichkeit, die orts aufgelösten Messungen an seinem Messaufbau durchzuführen, auch hierfür vielen Dank. Dr. Markus Fuchs und Dr. Annette Kadereit versorgten mich mit Insider-Informationen über Ihre exquisiten Single-Aliquot Zaubereien, was den Kalibrationen der Messgeräte einiges an Schrecken nahm.

Vielen Dank an alle Kolleginnen und Kollegen an der Forschungsstelle Archäometrie für Rat und Tat bei vielerlei Fragen und Problemen.

Mit Jan und Markus als Zimmergenossen machte es immer Spaß, morgens zur Arbeit zu kommen und noch viel mehr Spaß, abends Essen zu gehen. Annette sorgte auch an ruhigen Tagen für den nötigen Schwung. Mit Regina war trotz Stress und Hektik immer ein kleiner Plausch über die Physik oder andere wichtige Dinge möglich.

Für die rasche Korrektur meiner Arbeit danke ich Markus, Annette, Regina und Steffen.

Meinen Eltern danke ich für die vielfältige Unterstützung und Förderung während meiner Ausbildung.

Danke Karin.